

BESTIMMUNG DES MAGNETISCHEN MOMENTES VON IN FLÜSSIGEM
BROM GESTOPPTEN POSITIVEN MÜONEN AUS IHRER LARMORFREQUENZ

Dissertation
zur Erlangung des Grades
'Doktor der Naturwissenschaft'

am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Rainer Schulze
geb. in Lengerich

Mainz 1979

BESTIMMUNG DES MAGNETISCHEN MOMENTES VON IN FLÜSSIGEM
BROM GESTOPPTEN POSITIVEN MÜONEN AUS IHRER LARMORFREQENZ

Dissertation
zur Erlangung des Grades
'Doktor der Naturwissenschaft'

am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Rainer Schulze
geb. in Lengerich

Mainz 1979



1. Berichterstatter: Prof. Dr. E. Klempt

2. Berichterstatter: Prof. Dr. G. Gräff

Tag der mündlichen Prüfung: 9. Mai 1979

Inhaltsverzeichnis

	Seite
0. Einleitung.....	1
1. Motivation.....	2
2. Methoden zur Messung von μ_μ/μ_p	7
2.1. Hyperfeinstrukturübergänge von Müonium...	8
2.2. Messung der Larmor-Präzession.....	8
2.2.1. Das stroboskopische Verfahren.....	10
3. Experimenteller Aufbau.....	16
3.1. Experimentelle Anordnung.....	17
3.2. Elektronik.....	20
4. Das Magnetsystem.....	25
4.1. Der NMR-Magnet.....	25
4.2. Zeitliche Stabilität des Magnetsystems...	27
4.3. Feldsteuerung und -überwachung.....	32
4.4. Magnetfeldhomogenität.....	36
4.5. Kalibration der NMR-Sonden.....	46
4.6. Zusammenfassung aller Magnetfeldkorrekturen.....	51
5. Chemie des positiven Müons.....	53
5.1. Verhalten von μ^+ in Materie.....	53
5.2. Die diamagnetische Abschirmung.....	55
5.3. Auswahl der Targetsubstanz.....	56
5.4. Die diamagnetische Abschirmung des μ^+ in Br_2	58
5.4.1. Der Isotopieeffekt.....	59
5.4.2. Assoziationsverschiebung.....	61

5.5.	H ₂ O als Targetmolekül.....	67
5.5.1.	Verunreinigtes Brom als Targets substanz...	67
5.5.2.	H ₂ O als Target.....	68
5.6.	Zusammenfassung aller chemischen Korrekturen.....	69
6.	Ergebnisse.....	73
	Literaturverzeichnis.....	85
	Lebenslauf.....	87

0. Einleitung

In der vorliegenden Arbeit wird ein Experiment zur Präzisionsmessung des magnetischen Momentes des positiven Müons beschrieben. Mit dem dabei angewandten stroboskopischen Verfahren wurde eine neue Methode zur Messung der Larmor-Präzession gestoppter Müonen erfolgreich erprobt und gezeigt, daß sie geeignet ist zu Präzisionsmessungen bei hohen Teilchenintensitäten. Die bei dieser Methode auftretenden systematischen Effekte und Fehlerquellen, die eine Bestimmung des magnetischen Momentes aus der Larmorfrequenz von in Flüssigkeiten gestoppten positiven Müonen beeinflussen, werden diskutiert und abgeschätzt. Im vorliegenden Experiment limitieren derzeit nicht die apparativen Bedingungen die Genauigkeit, sondern die Unsicherheit bei der Bestimmung der Abschirmung des externen Magnetfeldes am Ort des Müons durch seine Umgebung. Allerdings konnte der Fehler aus dieser Korrektur gegenüber früheren Experimenten deutlich vermindert werden. Der gemessene Wert für das magnetische Moment des Müons in Einheiten des magnetischen Momentes des Protons beträgt

$$\mu_{\mu}/\mu_p = 3,1833448 (29) \quad (0,9 \text{ ppm})$$

Dies ist die zur Zeit genaueste Messung des magnetischen Momentes des positiven Müons.

1. Motivation

Unsere Kenntnis der Physik spiegelt sich wider in der Kenntnis der fundamentalen Konstanten, d.h. der Parameter, die es gestatten, aus den theoretischen Gleichungen der Physik quantitative Vorhersagen abzuleiten sowie aus experimentellen Meßwerten andere Größen abzuleiten. Präzisionsmessungen der fundamentalen Konstanten mit erhöhter Genauigkeit sind also kein Selbstzweck mit dem Ziel, nur eine weitere Dezimalstelle hinzuzufügen. Ihre genauere Bestimmung dient vielmehr dazu, die Konsistenz physikalischer Theorien zu prüfen und eventuelle Inkonsistenzen aufzuspüren bzw. bestehende möglicherweise zu beseitigen¹.

In dem Satz der fundamentalen Konstanten sind dabei vor allem die dimensionslosen Konstanten bedeutsam, da sie nicht von einem bestimmten Maßsystem abhängen und sich somit besonders gut zum Test physikalischer Theorien eignen. Ein hervorragendes Beispiel dafür ist die Feinstrukturkonstante α , die als Entwicklungsparameter in der Quantenelektrodynamik (QED) dient.

Unter den modernen physikalischen Theorien spielt die QED eine besondere Rolle, da sie den Anspruch erhebt, die Wechselwirkung zwischen Elektronen, Müonen, Photonen und externen elektromagnetischen Feldern exakt zu beschreiben. Präzisionsmessungen des g - Faktors des Elektrons und des Müons, die durch die QED quantitativ vorhergesagt werden, haben unter anderem diese Theorie bisher glänzend bestätigt. Das Müon und müonische gebundene Systeme spielen bei diesen Tests der QED und ihrer Rechenmethoden eine wesentliche Rolle. Zur Auswertung einiger Experimente, die das Müon als Probe der Quantenelektrodynamik benutzen, wird das Verhältnis der magnetischen Momente des Müons und des Protons μ_μ/μ_p benötigt. Diese fundamentale Konstante gehört zu denjenigen Daten in der QED, deren Fehler in

einer allgemeinen Konstantenanpassung nicht vernachlässigbar ist².

Bis vor kurzem war μ_μ/μ_p nur auf 2,6 ppm (ppm = part per million = 10^{-6}) bekannt³. Die aktuellen Gründe zu einer Messung von μ_μ/μ_p mit einer gegenüber diesem Wert deutlich verbesserten Genauigkeit sowie die Konsequenzen sollen im weiteren genauer erläutert werden:

a) Die Anomalie des magnetischen Momentes des Müons

Eine Präzisionsmessung der Anomalie des magnetischen Momentes des Müons wurde kürzlich am CERN abgeschlossen. In diesem Experiment wurde die (g-2)-Frequenz ω_a und gleichzeitig das Magnetfeld mit einer Protonenspinresonanz gemessen. Zur Extraktion der Anomalie a aus diesen Größen wird zusätzlich der Quotient μ_u/μ_p benötigt⁴:

$$\frac{a}{1+a} = \frac{\omega_a}{\omega_p^{\text{vac}}} \cdot \frac{\mu_p}{\mu_\mu}$$

ω_a = (g-2)-Präzessionsfrequenz der Müonen

ω_p^{vac} = Kernresonanzfrequenz freier Protonen

Dabei enthält ω_p^{vac} unter anderem die Korrektur auf die diamagnetische Abschirmung des externen Magnetfeldes am Ort des Protons in einer Wasserprobe.

Der Wert der Anomalie a und sein Fehler hängen also direkt vom Verhältnis der magnetischen Momente des Müons und des Protons ab. Da beim (g-2)-Experiment die Anomalie auf 8 ppm bestimmt wurde⁴, ist es nötig, μ_μ/μ_p mindestens auf 1 ppm zu kennen, da sonst der Fehler des magnetischen Momentes nicht vernachlässigbar ist. Bis vor kurzem war jedoch die beste direkte Messung von μ_μ/μ_p bereits mit einem Fehler von 2,6 ppm behaftet. Zudem bestand zu Beginn dieses Experimentes zwischen diesem Wert und dem aus der Hyperfeinstrukturaufspaltung von Müonium indirekt ermittelten eine Dis-

krepanz von 5,3 ppm⁵. Diese Diskrepanz konnte erst kürzlich auf einen Rechenfehler bei der theoretischen Bestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung zurückgeführt und damit geklärt werden⁶.

b) Vergleich mit der Hyperfeinstruktur von Müonium

Präzisionsmessungen der Hyperfeinstrukturaufspaltung des Grundzustandes von Müonium (μ^+e^-) gestatten im Vergleich mit theoretischen Vorhersagen einen empfindlichen Test der Beschreibung von gebundenen 2-Teilchen-Zuständen in der Quantenelektrodynamik und der Genauigkeit ihrer Rechenmethoden. Der bisher beste experimentelle Wert wurde mit der Messung von Zeeman-Übergängen in Müonium bei starkem Magnetfeld erreicht⁷:

$$\Delta\nu_{\text{exp}} = 4463302,35 \text{ (0,52) kHz}$$

Die Genauigkeit der theoretischen Vorhersage ist jedoch zur Zeit noch um eine Größenordnung schlechter. Die Hauptursache dafür liegt in der Unsicherheit des gemessenen Wertes von μ_μ/μ_p , da der theoretische Ausdruck für die Hyperfeinstrukturaufspaltung das magnetische Moment des Müons enthält:

$$\Delta\nu = \left[\frac{16}{3} \cdot \alpha^2 \cdot c \cdot R_\infty \cdot (\mu_\mu/\mu_B) \right] \cdot [1 + (m_e/m_\mu)]^{-3} \cdot [1 + Q + R]$$

Die erste Klammer ist als die nicht-relativistische Fermi-Formel bekannt, die zweite stellt die reduzierte Massenkorrektur dar. Die dritte Klammer enthält alle Standard-QED- und Rückstoßkorrekturen. Neue Bestimmungen bisher noch nicht berechneter Terme^{8,9} verringern die Unsicherheit dieser Korrekturen auf einige kHz, so daß der Hauptfehler zum theoretischen Wert der Hyperfeinstruktur vom Fehler in μ_μ/μ_p herrührt⁹:

$$\Delta\nu_{\text{th.}} = 4463297,9 \text{ (7,0) kHz} \quad (1,6 \text{ ppm})$$

Dabei wurde das gewichtete Mittel der beiden genauesten Messungen von μ_μ/μ_p verwendet ^{3,7}:

$$\mu_\mu/\mu_p = 3,1833417 \text{ (39)} \quad (1,2 \text{ ppm})$$

Eine direkte Bestimmung des magnetischen Momentes des Müons mit einer gesteigerten Genauigkeit von besser als 1 ppm ermöglicht es also, die Vollständigkeit der theoretischen Korrekturen zur Hyperfeinstrukturaufspaltung von Müonium zu überprüfen.

c) Feinstrukturkonstante α

Setzt man voraus, daß die Berechnung der QED-Korrekturen der Hyperfeinstruktur von Müonium korrekt ist, so läßt sich daraus die Feinstrukturkonstante α berechnen. Die Hyperfeinstrukturaufspaltung und die Feinstrukturkonstante sind dabei durch die oben angegebene Gleichung miteinander verknüpft. Mit den besten Werten der benötigten Fundamentalkonstanten ^{2,10} erhält man daraus zusammen mit den neuen Berechnungen der QED-Beiträge ⁹:

$$\Delta\nu_{th.} = \alpha^2 \cdot \mu_\mu/\mu_p \cdot (2,63294557 \pm 0,3 \text{ ppm}) 10^{10} \text{ kHz}$$

Unter Voraussetzung der Gültigkeit der QED ergibt sich so zusammen mit der experimentellen Messung von $\Delta\nu$ ein Wert von α , dessen Genauigkeit im wesentlichen durch den Fehler in $\Delta\nu$ und μ_μ/μ_p bestimmt ist. Dabei wird allerdings nicht die Genauigkeit erreicht, die die Bestimmung durch den Josephson-Effekt ergibt. Im Rahmen einer Anpassung der fundamentalen Konstanten untereinander kann dieser Wert jedoch mit dazu dienen, die allgemeine Konsistenz der Daten zu überprüfen. Bei der letzten Konstantenanpassung 1973 ² waren dabei noch die oben erwähnten Diskrepanzen bei der Bestimmung von μ_μ/μ_p eines der wesentlichen Probleme beim Vergleich der QED-Daten untereinander und mit den Konstanten ohne QED-Korrekturen.

d) Massenverhältnis des Müons und des Elektrons

Der Quotient μ_μ/μ_p ist mit dem Massenverhältnis Müon zu Elektron über folgende Beziehung verknüpft:

$$\frac{m_\mu}{m_e} = (\mu_p/\mu_\mu) \cdot (\mu_e/\mu_p) \cdot (g_\mu/g_e)$$

Dabei sind die Größen g_μ und g_e sehr genau bestimmt (g_μ auf $\sim 10^{-8}$, g_e auf $\sim 10^{-10}$); μ_p/μ_e ist ebenfalls auf 10^{-8} bekannt. Also liefert das magnetische Moment des Müons den bei weitem größten Beitrag zum Gesamtfehler. Eine Neubestimmung von μ_μ/μ_p auf besser als 1 ppm ergibt somit einen Wert für m_μ/m_e mit im wesentlichen eben dieser Genauigkeit.

Diese vorliegenden Motive führten zu dem im folgenden beschriebenen Experiment zur Messung des magnetischen Momentes des Müons. Dabei wurde die Größe μ_μ/μ_p durch Messung der Larmor-Präzession gestoppter polarisierter Müonen in einem transversalen Magnetfeld bestimmt; mit der bisherigen vorläufigen Auswertung wurde hier eine Genauigkeit von 0,9 ppm erreicht¹¹.

Meine Mitarbeit an diesem Experiment umfaßte insbesondere die Bestimmung des Magnetfeldes, in dem die gestoppten positiven Müonen präzedieren. Demgemäß liegt der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Handhabung und Messung des extern angelegten Magnetfeldes, sowie in der Bestimmung von Effekten, die das Magnetfeld am Ort des Müons beeinflussen.

2. Methoden zur Messung von μ_μ/μ_p

Zu Beginn sollen hier kurz die wesentlichen Eigenschaften des Müons aufgelistet werden:

$$\text{Spin } s_\mu = 1/2$$

$$\text{Masse } m_\mu = 206,76859 (29) \cdot m_e \quad 7$$

$$\text{Lebensdauer } \tau_\mu = 2,19711 (8) \mu\text{s} \quad 12$$

$$\text{Magnet. Moment } \mu_\mu = \frac{g_\mu \hbar}{2m_\mu c} \cdot s = 3,1833448 (29) \cdot \mu_p \quad 11$$

Aufgrund der schwachen Wechselwirkung zerfällt das positive Müon in ein Positron und zwei Neutrinos:

$$\mu^+ \longrightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$$

Dieser Zerfall erfolgt asymmetrisch in Bezug auf den Spin des Müons, da die schwache Wechselwirkung die Parität verletzt. Die Zerfallsverteilung ist gegeben durch:

$$P(\theta) \cdot d\Omega = [1 + a \cdot \cos\theta] \cdot d\Omega$$

wobei θ den Winkel zwischen dem μ^+ -Spin und dem Impuls des Zerfallspositrons darstellt. Der Asymmetrieparameter a ist von der Positronenenergie abhängig. Unter Berücksichtigung aller e^+ -Energien ergibt sich als Mittelwert $a = 1/3$. Dieser asymmetrische Zerfall läßt sich experimentell nur dann beobachten, wenn die Spins der beobachteten Müonen etwa die gleiche Richtung besitzen; die Müonen müssen also polarisiert sein. Der am Schweizerischen Institut für Nuklearforschung (SIN) zur Verfügung stehende Müonenstrahl besitzt eine Polarisation von etwa 80 %, die durch eine geeignete Impulsselektion der Müonen erreicht wird.

Sämtliche Experimente zur Messung des magnetischen Momentes des Müons μ_μ/μ_p nutzen diesen asymmetrischen Zerfall aus.

Die dabei angewandten Methoden lassen sich in zwei Gruppen aufteilen:

- die Messung von Hyperfeinstrukturübergängen von Müonium und
- die Messung der Larmor-Präzession der Spins gestoppter Müonen im transversalen Magnetfeld.

2.1. Hyperfeinstrukturübergänge von Müonium

Das freie Atom Müonium (μ^+e^-) wird gebildet beim Stop von Müonen in Edelgasen in der Gasphase. Sind die μ^+ anfangs polarisiert und wird ein zum Müonenspin longitudinales Magnetfeld überlagert, so bleibt die Polarisierung erhalten. Bei Einstrahlen geeigneter Übergangsfrequenzen können dann Spin-Flips der μ^+ -Spins durch Messung der Polarisationsänderung nachgewiesen werden. Zu den Experimenten, die mit dieser Methode arbeiten, zählen die Messung der Hyperfeinstrukturaufspaltung Δv bei sehr schwachem Magnetfeld⁵, aus der sich μ_μ/μ_p errechnen lässt, und die Induktion von zwei Zeeman-Übergängen zwischen den Hyperfeinstruktur-Niveaus von Müonium⁷. Aus dieser Messung ergibt sich dann direkt das magnetische Moment des Müons. Beide Experimente arbeiten in der Gasphase und benötigen daher große Target-Volumina. Zudem werden magnetische Hochfrequenz-felder hoher Feldstärke zur Induktion von Übergängen benötigt, die über das Target-Volumen homogen sein müssen.

2.2. Messung der Larmor-Präzession

Werden polarisierte Müonen in einem flüssigen Target gestoppt, und überlagert man ein zum Müon-Spin transversales Magnetfeld, so präzediert der Polarisationsvektor mit der Larmor-Frequenz $\omega_L = \vec{\mu} \cdot \vec{B}/\hbar$. Aufgrund des asymmetrischen Zerfalls ist die Zählrate der Zerfallspositronen in einen festen Raumwinkel mit dieser Larmor-Frequenz Cosinus - moduliert. Die Positronenzählrate in ein Zählerteleskop ist dann unter Berücksichtigung des exponentiellen Zerfallsgesetzes

gegeben durch:

$$dN(\theta, t) \sim \frac{1}{\tau_{\mu}} \cdot e^{t/\tau_{\mu}} \cdot [1 + a_{\text{eff}} \cdot \cos(\omega_L \cdot t + \phi)]$$

wobei a_{eff} die effektive Asymmetrie beschreibt, in die auch die Zeit- und Raumauflösung des Zählers eingeht. Der Phasenwinkel ϕ ist die Phase der Polarisation für $t = 0$ und hängt von der Zählerstellung ab.

Zur Gruppe dieser Experimente gehören:

- zeitdifferentielle Messungen der Larmor-Frequenz im transversalen Magnetfeld³. Dabei wird bei bekanntem Magnetfeld für jedes Zerfallspositron in einen definierten Raumwinkel die Zeit zwischen dem Müonstop und -Zerfall bestimmt und in einem Histogramm eingeordnet. Aus der Analyse der modulierten Zerfallskurve ergibt sich dann die Präzessionsfrequenz der Spins der gestoppten Müonen.
- stroboskopische Beobachtungen der Müon-Spin-Präzession durch stroboskopische Koinzidenzen mit der Präzessionsfrequenz der μ^+ -Spins¹³. Bei dieser Methode wird die periodische Zeitstruktur der Zerfalls-Positronen verglichen mit einem Referenz-Oszillator und dasjenige Magnetfeld bestimmt, bei dem beide Frequenzen übereinstimmen.

Beide Methoden verlangen eine eindeutige Identifizierung des Zerfallspositrons, d.h. jedem Positron muß eindeutig genau ein gestopptes Müon zugeordnet werden können. Diese Forderung begrenzt die maximale Stoprate auf einige 10^4 Müon-Stops pro Sekunde (bei einer Beobachtung über 10 Müon-Lebensdauern). Die am SIN zur Verfügung stehende hohe Strahlintensität von etwa 10^6 Müonen/sec kann also mit diesen Verfahren nicht ausgeschöpft werden.

- Messung eines stroboskopischen Signales mit gepulstem Strahl bei Variation des transversalen Magnetfeldes¹⁴. Diese Methode wurde in dem hier beschriebenen Experi-

ment erstmals zur Messung des magnetischen Momentes des Müons ausgenutzt und soll im weiteren ausführlich beschrieben werden.

2.2.1. Das stroboskopische Verfahren

Diese Methode der stroboskopischen Beobachtung wurde von J. Christiansen et al.¹⁵ zuerst angewandt zur Messung der Larmor-Präzession von Kernen über gestörte γ -Winkel-Korrelation (γ PAD). Die Grundlage für dieses Verfahren bildet ein gepulster Strahl der zu beobachtenden Teilchen; dabei muß die Spin-Präzessionsfrequenz der gestoppten Teilchen in etwa mit der Pulsfrequenz des Strahles übereinstimmen. Der große Vorteil dieser Methode gegenüber allen anderen vorher genannten Verfahren zur Messung von μ_μ/μ_p ist der, daß dabei auf eine eindeutige Zuordnung eines jeden Zerfallspositrons zu einem gestoppten μ^+ verzichtet werden kann. Dadurch ist es möglich, die volle Strahlintensität auszunutzen und somit die erforderliche Meßzeit entsprechend zu verringern. Der Müonenstrahl am SIN besitzt die oben geforderte gepulste Struktur. Diese ist verursacht durch die zeitliche Mikrostruktur des primären Protonenstrahls, die durch die Beschleunigerfrequenz von 50,63 MHz bestimmt ist. Die Müonen folgen aufeinander entsprechend dieser Struktur zeitlich in einzelnen Bursts mit einer Periode von etwa 20 ns. Die zeitliche Stabilität dieser Struktur ist die der Beschleuniger-Hochfrequenz; sie entspricht der Langzeitstabilität des Quarz-Oszillators und beträgt etwa 10^{-8} . Die Breite eines Beam-Bursts ist abhängig vom selektierten Müonen-Impuls im Strahlführungssystem. Bei dem im Experiment verwendeten Müon-Impuls von 125 MeV/c beträgt sie etwa 5 ns. Die zeitliche Aufnahme zweier Beam-Bursts mit einem Vielkanal-Analysator ist in Abbildung 1 wiedergegeben. Der Müonenstrahl am SIN besitzt somit die Voraussetzungen zur Anwendung einer stroboskopischen Methode.

Das Prinzip dieses Verfahrens - angepaßt an den gepulsten Müonenstrahl am SIN - besteht in folgendem:

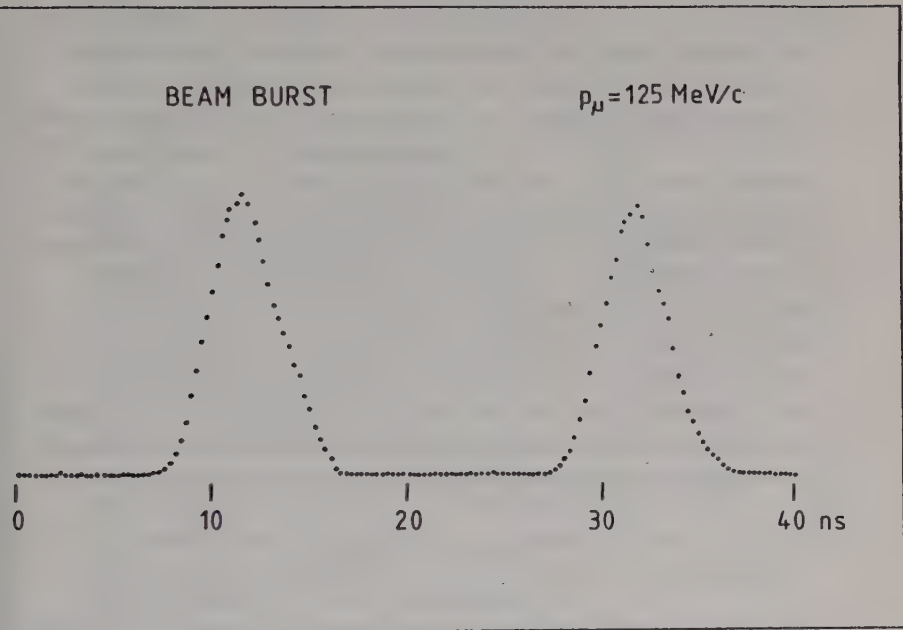


Abb. 1 : Zeitliche Aufnahme der Mikrostruktur des
Müonenstrahls mittels TAC und Vielkanal.
Der TAC wird durch ein μ^+ gestartet und
durch die Beschleunigerfrequenz von 50 MHz
gestoppt. Die Breite eines Beam-Bursts be-
trägt hier 4,5 ns .

Man wählt ein Magnetfeld derart, daß die gestoppten Müonen in diesem Feld mit einer Frequenz präzedieren, die in etwa gleich ist der Pulsfrequenz des gestoppten μ^+ -Strahls oder ein ganzzahliges Vielfaches hiervon beträgt. Die Spins aufeinanderfolgender im Target gestoppter Beam-Bursts haben dann die gleiche Phase, d.h. sie werden kohärent überlagert. Aus dieser kohärenten Überlagerung resultiert dann eine resonante Überhöhung der effektiven Asymmetrie des Müon-Zerfalls. Wird das Magnetfeld variiert, so stimmen als Folge hiervon die Larmor-Frequenz der Spins der gestoppten Müonen und die Frequenz des Müonen-Strahls nicht mehr überein; die eben beschriebene kohärente Überlagerung ist dann nicht mehr gegeben. Das gilt auch für ganzzahlige Vielfache der Burst-Frequenz. Der Grad der Kohärenz und damit die effektive Asymmetrie hängen von der Differenz zwischen der Spin-Präzessionsfrequenz der μ^+ und der Pulsrepetitionsfrequenz des Strahls ab. Maximale Kohärenz tritt auf bei

$$\omega_{\mu} = n \cdot \omega_{\text{Beam}} \quad n = 1, 2, \dots$$

Sie verschwindet, wenn für die Differenz beider Frequenzen die folgende Bedingung erfüllt ist:

$$|\omega_{\mu} - n \cdot \omega_{\text{Beam}}| > \frac{1}{\tau_{\mu}}$$

ω_{μ} = Larmorfrequenz der μ^+ -Spins

ω_b = Burst-Frequenz des Müonenstrahls

τ_{μ} = Müon-Lebensdauer

Zur Beobachtung der Kohärenz ist es nötig, von einer kontinuierlichen Beobachtung der Zerfallspositronen abzugehen, wie sie bei der zeitdifferentiellen Methode üblich ist. Der Grund ist, daß bei Messung über die gesamte Umlaufperiode des Spins hinweg über die Asymmetrie gemittelt wird.

Daher erfolgt stattdessen die Beobachtung der Zerfalls-positronen nur in einem Zeitintervall innerhalb der Burst-Periode, das klein ist gegen die der Spin-Präzessionsfrequenz. Abhängig von der Phasenlage dieses Zeitfensters in Bezug auf die Strahlstruktur erhält man so bei Variation des Magnetfeldes eine charakteristische Änderung der Zählrate der Zerfallspositronen.

Für die eben qualitativ beschriebene stroboskopische Methode läßt sich eine exakte Theorie der Linienform aufstellen, aus der ein analytischer Ausdruck für die Kurvenform folgt⁹. Eine ausführliche Diskussion dieser Theorie ist Teil der Dissertation von H. Wolf¹⁶; es soll daher hier auf eine ausführliche Wiedergabe verzichtet und nur der Gedankengang sowie das Ergebnis zitiert werden.

Zur Berechnung der Linienform muß die Zählrate der Zerfalls-positronen als Funktion der Zeit und der Larmor-Frequenz der Spins der gestoppten Müonen angegeben werden. Sie wird im wesentlichen vorgegeben durch folgende Bedingungen:

a) die Stoprate der Müonen wird durch die periodische Strukturfunktion $F(t)$ beschrieben mit

$$F(t) = F(t + n \cdot T), \quad n = 1, 2, \dots \quad \text{und}$$

$$\int_0^T F(t) dt = 1 \quad T = 20 \text{ ns}$$

b) Die Zeitfenster, in denen die Zerfallspositronen gezählt werden, haben ebenfalls eine periodische Struktur $G(t)$; diese ist synchron mit der Zeitstruktur des Müonenstrahls.

c) Die Zerfallswahrscheinlichkeit zur Zeit t ist für Müonen, die zur Zeit t' gestoppt wurden, für den Winkel zwischen Müonspin und Positronimpuls

$$\sim \frac{1}{\tau} \cdot e^{-(t-t')/\tau} \cdot [1 + a \cdot \cos(\omega_L(t-t') - \varphi)]$$

Die Positronen-Zählrate N in der Meßzeit t_M ist dann gegeben durch:

$$N = \int_0^{t_M} G(t) dt \int_{-\infty}^{t'} F(t') dt' \frac{1}{\tau} e^{-(t-t')/\tau} [1 + a \cdot \cos(\omega(t-t') - \varphi)]$$

Dabei beinhalten die periodischen Funktionen $G(t)$ und $F(t)$ die stroboskopische Struktur des Positronsignals. Das stroboskopische Signal folgt dann durch Ausführung der Integration in obiger Gleichung, wobei die Struktur-funktionen F und G durch ihre Fourier-Reihen beschrieben werden. Nach längerer Zwischenrechnung erhält man für das Signal der Zerfallspositronen so den folgenden Ausdruck für die zweite Harmonische in Bezug auf die Strahlstruktur ($\omega_\mu = 2 \cdot \omega_{\text{Beam}}$):

$$N_i = N_0 \cdot \lambda_i \cdot [1 + A_{\text{eff}} \cdot \frac{\sin 2\pi \lambda_i}{2\pi \lambda_i} \cdot \frac{\cos \varphi_i - x \cdot \sin \varphi_i}{1+x}] \quad (*)$$

Dabei stellen λ_i und φ_i die relativen Breiten und Phasen der Zählfenster dar in Bezug auf die Strahlstruktur von 50 MHz; die Größe x beinhaltet das magnetische Moment des Müons und die Stärke des Magnetfeldes:

$$x = \tau_\mu \cdot [\omega_p \cdot (\omega_\mu / \omega_p) - 2 \cdot \omega_{\text{BEAM}}]$$

Die effektive Asymmetrie A_{eff} enthält im wesentlichen die endliche zeitliche Breite der Beam-Bursts des Müonenstrahls sowie die räumliche Ausdehnung der Positronenzähler.

Aus Gleichung (*) kann man ersehen, daß der Kurvenverlauf (d.h. die e^+ -Zählrate als Funktion der Magnetfeld-Stärke) im allgemeinen Fall eine lineare Überlagerung eines Dispersions- und eines Absorptionssignales ist. Die Linienbreite dieses stroboskopischen Signales ergibt sich als

$$\delta_\nu = \frac{1}{\pi \cdot \tau_\mu} = 145 \text{ kHz}$$

und ist somit nur durch die Müon-Lebensdauer τ_{μ} bestimmt. Der Vorteil des stroboskopischen Verfahrens besteht darin, daß sich für das stroboskopische Signal ein analytischer Ausdruck angeben läßt; aus Gleichung (*) kann gezeigt werden, daß Detektorgeometrie, Pulsform der Strahlstruktur und Größe des Zeitfensters, in dem die Positronen gezählt werden, die Struktur der Linienform nicht verändern.

Andererseits erfordert die große Linienbreite des stroboskopischen Signals auch eine sorgfältige Analyse der Kurvenform. Will man das magnetische Moment des Müons daraus auf 0,5 ppm genau bestimmen, so muß die Linie auf 1:6000 genau interpretiert werden können. Diese Genauigkeit liegt jedoch durchaus im Bereich des Realisierbaren (so wird bei Bestimmungen der Lambshift eine Linieninterpretation gleicher Größenordnung durchgeführt).

3. Experimenteller Aufbau

Das Experiment wurde am supraleitenden Müonenkanal des SIN durchgeführt, der einen polarisierten Müonenstrahl hoher Intensität liefert. Die Müonen werden dabei über den Pion-Zerfall erzeugt. Man lenkt Pionen mit einem definierten Impuls in ein supraleitendes Solenoid (5,0 Tesla Feldstärke, 8 m Länge, 12 cm Innendurchmesser), in dem sie sich auf langgezogenen Spiralbahnen bewegen und während des Fluges zu Müonen zerfallen. Bei dem hohen Impuls der Pionen (typischer Wert 220 MeV/c) werden im Laborsystem alle Zerfallsmüonen in Vorwärtsrichtung in einen Kegel von nur 11° emittiert. Dabei sind nur die Müonen aus dem Vorwärts- und Rückwärtszerfall in Flugrichtung polarisiert. Durch eine geeignete Impulsselektion dieser Müonen in einem Ablenkmagneten wird ein polarisierter Müonenstrahl gewonnen. Eine Kontamination des Strahls mit Pionen, Protonen und Elektronen wird durch eine unterschiedliche Einstellung der impulsselektierenden Ablenkmagnete vor und hinter dem Solenoid weitgehend unterdrückt. Aus dem μ -Kanal werden so im Schwerpunktsystem rückwärts emittierte Müonen aus dem π -Zerfall extrahiert. Die zeitliche Mikrostruktur des Strahles bleibt nur bei einem hohen Pionimpuls erhalten. Der daraus folgende ebenfalls hohe Müonimpuls ($p_\mu = 125$ MeV/c bei $p_\pi = 220$ MeV/c) erfordert für unser Experiment eine zusätzliche Moderation des Strahls, um eine optimale Stopprate im Target zu erzielen. Bei einem μ -Impuls von 125 MeV/c beträgt der Teilchenfluß durch eine Fläche von 4×6 cm etwa 10^7 /sec bei typischen Versuchsbedingungen (Intensität des primären Protonenstrahls = 50 μ A). Die Polarisation der Müonen ist dabei ca. 70% ; die μ^+ sind bei dem angegebenen Impuls zeitlich über 4,5 ns ausgeschmiert (vgl. Abb. 1). Der große Strahlquerschnitt von über 20 cm^2 muß im Experiment durch Kollimatoren

verringert werden. Die dabei erfolgende Aufstreuung bedingt eine sorgfältige elektronische Unterdrückung des Untergrunds. Die technische Realisierung im Experiment wird im folgenden genauer beschrieben.

3.1. Experimentelle Anordnung

Der experimentelle Aufbau zum Stop der Müonen und zum stroboskopischen Nachweis der Zerfallspositronen ist in Abb.2 gezeigt. Der Müonenstrahl passiert bei Eintritt in das transversale Magnetfeld einen Satz von Bleikollimatoren, die Müonen werden dabei vom Zähler B nachgewiesen. Im letzten Kollimatorblock vor dem Target sind zwei Degradereinsätze untergebracht, die die Energie der μ^+ verringern. Der erste Degrader besteht aus einem Satz verschieden dicker Kupferzylinder (0-9 mm Länge), die auf einer drehbaren Scheibe angebracht sind. Durch ferngesteuerte Drehung der Scheibe kann dann die Degraderdicke variiert werden. Unmittelbar auf diese Kupferzylinder folgt ein massiver Tantalblock (10 mm Länge). Die Dicke der Moderatoren wird im Experiment so eingestellt, daß die Zahl der im Target gestoppten Müonen maximal ist. Der gesamte Kollimatorblock ist gegenüber der Targetmitte um 15 mm abgesenkt, um die Stoprate der μ^+ zu optimieren. Die Größe dieser Verschiebung wurde in Vorversuchen experimentell bestimmt. Der Müonenfluß durch den Kollimatorblock betrug etwa $2 \cdot 10^6$ /sec bei einer typischen primären Protonenstrahlintensität von 40 μ A.

Im Kollimatorblock sind weiter noch zwei Sonden zur Magnetfeldregulierung und -überwachung untergebracht (NMR). Degraderöffnung und Kollimator sind durch die Szintillationszähler L_1 , L_2 und L_3 sowie A_1 abgedeckt. Diese Zähler sollen störende Ereignisse aus dem Bereich des Degraders bzw. des Kollimators registrieren. Wegen der hohen Zählrate im Müonenstrahl sind hier zunächst zwei Zähler (L_1 und L_2) hintereinander angeordnet.

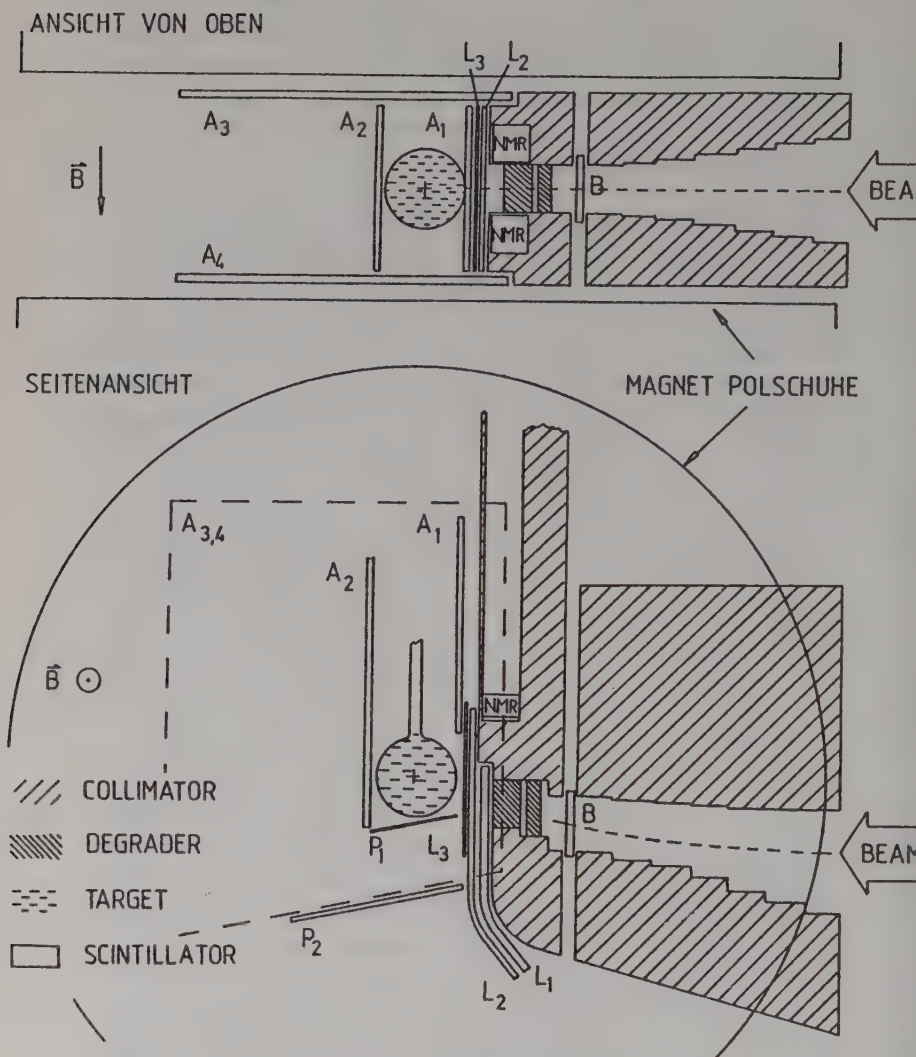


Abb. 2 : Schematische Ansicht der experimentellen Anordnung mit Szintillationszählern. Der Durchmesser der Polschuhe beträgt 30 cm. "NMR" zeigt den Sitz von Regel- und Monitorsonde an.

Zerfallspositronen von Müonen, die in L_2 gestoppt wurden, werden durch den dünnen Zähler L_3 nachgewiesen. Der Rest des Kollimators ist nach oben hin durch A_1 abgeschirmt. Unmittelbar an den Zähler L_3 liegt das Brom-Target an; das Target ist genau im Zentrum zwischen den Polschuhen des Magneten positioniert. Als Targetbehälter dient eine Quarzkugel mit 15 mm Durchmesser (Volumen $\sim 14 \text{ cm}^3$) und einer Wandstärke von ca. 0,2 mm. Als Material für diese Kugel wurde Quarz gewählt, weil die Polarisierung von in Quarz gestoppten Müonen klein ist¹⁷; hiernach wird die Polarisierung mit etwa 0,2 angegeben. Die Quarzkugel ist an ihrem Einfüllstutzen über einen Aluminiumträger auf einem X-Y-Schlitten außerhalb des Magnetfeldes befestigt und kann so über eine Fernbedienung horizontal und vertikal bewegt werden. Diese Fernbedienung wird benötigt, um während des Experimentes das Magnetfeld am Ort des Targets zu kontrollieren. Im Target werden etwa 40 % der einfallenden Müonen gestoppt. Die Zähler A_3 , A_4 decken großflächig beide Polschuhe des Magneten ab, und ein weiterer Zähler A_2 weist Ereignisse aus dem Raumwinkel hinter dem Target nach. Dieser Zähler kann ebenfalls vertikal bewegt werden, um den Zugang zum Targetbereich zu ermöglichen. Die Zähler L_1 , L_2 , L_3 , A_1 , A_2 , A_3 und A_4 bilden so einen nach oben und unten offenen Kasten, der nur dazu dient, die Zerfallspositronen aus dem Target von Untergrundereignissen zu unterscheiden. Die Positronen aus einem definierten Raumwinkel von im Target gestoppten μ^+ werden von dem Zählerteleskop $P_1 P_2$ nachgewiesen; der Zähler P_1 ist wieder dünn (1 mm stark, wie L_3), um die Anzahl gestopppter Teilchen klein zu halten.

Zerfallspositronen aus dem Target sind dann definiert durch das logische Signal :

$$P_1 \cdot P_2 \cdot (L_1 + L_2 + L_3 + A_1 + A_2 + A_3 + A_4)$$

Die Zahl der akzeptierten Positronen betrug im Experiment 27 000 /sec bei einer typischen Intensität des primären Protonenstrahls von 40 μ A . Wenn das Target entfernt wurde, fiel diese Zählrate auf 600 /sec. Der Untergrund ist also um einen Faktor 45 gegenüber dem Positron-Signal unterdrückt.

3.2. Elektronik

Die schnelle Elektronik zum Nachweis der Zerfalls-Positronen und des stroboskopischen Signals ist in Abb. 3 schematisch wiedergegeben. Wegen der besseren Übersichtlichkeit sind dabei die Koinzidenzen zur Definition verschiedener Kontrollzählraten und der Nachweis zur Messung der Strahlstruktur nicht mit angegeben.

Die Pulse sämtlicher Photomultiplier werden zuerst verstärkt und dann über schnelle Diskriminatoren in logische Signale umgeformt. Ereignisse aus den Zählern des Positron-Teleskops werden auf jeweils zwei Diskriminatoren mit unterschiedlichen Schwellen gegeben, wobei das Ausgangssignal des Diskriminators mit hoher Schwelle invertiert wird. Durch eine anschließende Koinzidenz kann so zwischen Positronen und Myonen unterschieden werden, die verschieden hohe Pulse erzeugen. Mit entsprechenden AND- und OR-Gattern wird dann weiter ein Zerfallspositron aus dem Target definiert durch:

$$P_1 \cdot P_2 \cdot \left(\sum_i L_i + \sum_i A_i \right)$$

In der nachfolgenden Elektronik wird dieses Signal mit dem Pick-up- Signal der Mikrostruktur des Strahles verglichen und je nach seiner relativen Phasenlage dazu in einem von insgesamt 10 CAMAC-Zählern registriert.

Der Zeitpunkt der obigen Koinzidenz wird festgelegt durch den Puls des Zählers P_1 , der vor der bisher beschriebe-

Abb. 3 : Blockdiagramm der schnellen Elektronik zum Nachweis eines stroboskopischen Positronsignals.

nen Logik geteilt wird. Über einen Constant-Fraction-Diskriminator und anschließender Koinzidenz mit dem Positron-Signal $P \cdot \bar{A}$ liefert dieser Puls dann ein zeitlich genau definiertes Signal. Dies wird wieder geteilt und in einem Zweig definiert verzögert. Anschließend werden beide Signale wieder über ein OR-Gatter zusammengeführt. Die Verzögerung ist so gewählt, daß dabei zwei Pulse im Abstand von 10 ns entstehen. Nach der Verzögerung werden beide Zweige in je einem Fan-Out verdoppelt, so daß dieselbe Koinzidenz $P \cdot \bar{A}$ jetzt mit einer Verzögerung von 10 ns zur Verfügung steht (A_8 und B_8 im Blockdiagramm). Der Doppelpuls dient als Timing-Signal; er leitet in der nachfolgenden Koinzidenzschaltung zusammen mit der 50 MHz-Referenz des Strahls beide Koinzidenzsignale A und B zu je einem von zweimal 5 Ausgängen $A_1 - A_5$ und $B_1 - B_5$. Diese Koinzidenzschaltungen sind in der als Time Quantizer bezeichneten Einheit zusammengefaßt. Im weiteren wird jeweils ein Ausgang B_i mit einem Ausgang A_{i+2} bzw. A_{i+3} in je einer Koinzidenz zusammengefaßt. Das Signal $P \cdot \bar{A}$ passiert dabei nur eines beider AND-Gatter, je nach seiner zeitlichen Lage in einem 4 ns-Intervall. Dadurch entstehen zweimal fünf Zeitfenster, die zusammen eine Zeit von 20 ns abdecken. Die Ausgangspulse dieser 10 Koinzidenzen werden dann von 10 CAMAC-Zählern registriert, deren Inhalt dann im Rechner gespeichert wird, der das Experiment steuert.

Zu Vergleichszwecken wird der oben beschriebene Phasenvergleich des Positronsignals nicht nur mit dem Pick-up-Signal durchgeführt, das aus der zeitlichen Mikrostruktur des primären Protonenstrahls abgeleitet ist; eine identische Schaltung leitet 10 weitere Zählfenster zusätzlich von der 50 MHz-Referenz des Beschleuniger-Quarzoszillators ab. Diese Zählraten wurden ebenfalls über CAMAC-Zähler registriert.

Die Meßdauer an jedem Feldpunkt wird bestimmt durch einen Preset-Zähler, der die Gesamtzahl der Zerfallspositronen $P \cdot \bar{A}$ mißt und die Messung über einen CAMAC-Interrupt stoppt, wenn eine vorgewählte Preset-Zahl erreicht ist. Dieses Verfahren ist zur Normalisierung der Zählraten an den verschiedenen Magnetfeld-Werten nötig.

Das gesamte Experiment wurde von einem PDP 11/40 Prozeßrechner überwacht und gesteuert. Abb. 4 zeigt ein globales Blockdiagramm des Systems. Der Computer hatte im einzelnen folgende Aufgaben:

- Speicherung der Inhalte der zweimal 10 CAMAC-Zähler, die die Positronenzählraten in den jeweils 10 fortlaufenden Zeitfenstern enthielten, sowie einzelner Kontrollzählraten wie z.B. die Rate gestoppter μ^+ , die Summe der Zerfallspositronen, die Meßzeit etc.
- Steuerung und Kontrolle des Magnetsystems (vgl. Kap.4).
- Erstellung von Histogrammen der stroboskopischen Signale und Übertragung der Meßwerte auf Magnetband. Sämtliche Histogramme konnten während der Messung zur Kontrolle auf einem Display sichtbar gemacht werden.

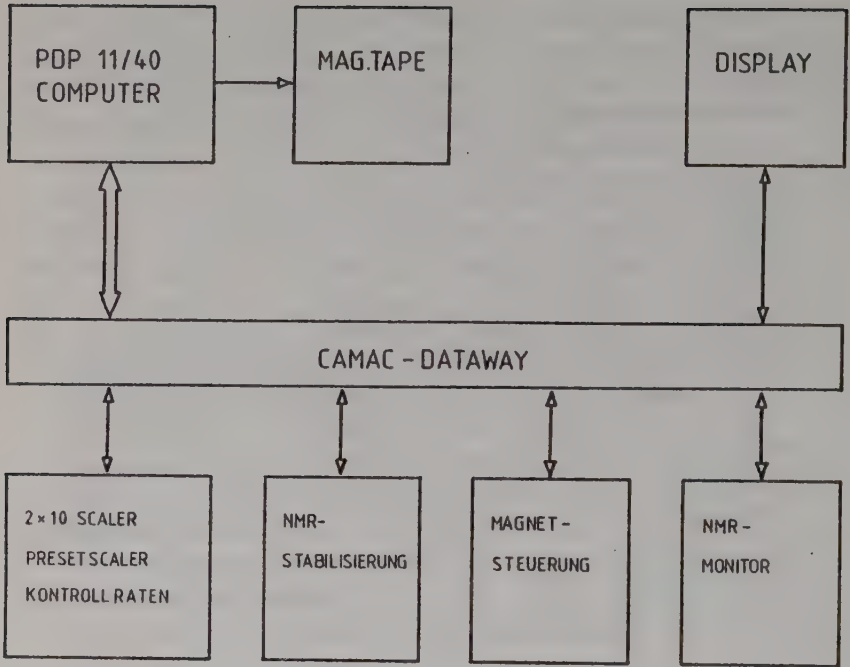


Abb.4 : Globales Blockdiagramm der Steuerung des Experimentes durch den Prozessrechner.

4. Das Magnetsystem

Aus dem experimentellen Verfahren und der angestrebten Genauigkeit ergeben sich im einzelnen die folgenden Anforderungen an das Magnetfeld, in dem die Müonen gestoppt werden:

- Der Magnet soll ein transversales Magnetfeld von $\sim 0,75$ T erzeugen. Dieser Wert für das Feld ergibt sich aus der zeitlichen Mikrostruktur des Müonenstrahls von 50 MHz und der zweiten Oberwelle des stroboskopischen Signals.
- Die Homogenität des Magnetfeldes über das Targetvolumen soll nicht wesentlich zum Gesamtfehler der Messung beitragen.
- Die zeitliche Stabilität des Feldes während der Meßzeit soll ebenfalls keinen wesentlichen Beitrag zum Gesamtfehler liefern.
- Schließlich erfordert das stroboskopische Verfahren eine schrittweise Variation des Magnetfeldes im Bereich des Resonanzsignals; der erforderliche Sweep-Bereich beträgt etwa 1% des Gesamtfeldes.

Die obigen Forderungen wurden im Experiment erfüllt durch einen kommerziellen NMR-Magneten mit stromstabilisiertem Netzgerät sowie einem zusätzlichen Protonenspinresonanz-Regelsystem.

Die Realisierung der obigen Anforderungen aus dem Experiment wird im folgenden genauer beschrieben.

4.1. Der NMR-Magnet

Während des Experimentes kamen zwei verschiedene NMR-Magnete zum Einsatz: In der Testphase sowie während der ersten Messungen mit noch niedriger Statistik wurde ein Magnet vom Typ BE-30 der Fa. Bruker eingesetzt, den die Magnetgruppe des SIN zur Verfügung gestellt hatte. An diesen Magneten wurden vor Beginn des Experimentes spezielle konische Polschuhe (Typ B-2 11K) zur Verbesserung der Ausgangshomogenität angepaßt; der Polschuh-Durchmesser betrug danach 300 mm, die Weite des

Luftspalts 48 mm. Dieser geringe Raum erforderte eine sehr kompakte Anordnung des experimentellen Aufbaus (Kollimatoren, Target und Szintillationszähler). Zudem hatte der Strahlquerschnitt des Müonenstrahls in etwa die Größe des Abstandes der Polschuhe. Beide Tatsachen erhöhten den Untergrund des stroboskopischen Signals. Daher entschlossen wir uns während des Experimentes, einen anderen Magneten mit einem größeren Abstand der Polkappen einzusetzen. Es handelte sich dabei um einen 12"-NMR-Magneten vom Typ V4012 -3B der Varian Associates. Sämtliche weiteren Angaben zum experimentellen Aufbau beziehen sich auf diesen letzteren Magneten.

Der Elektromagnet V4012 -3B besitzt zylindrische Polkappen mit einem Durchmesser von 12" = 300 mm. Die Polschuhe sind senkrecht montiert, so daß das Magnetfeld horizontal verläuft; ihr Abstand beträgt 83 mm. Das Magnetjoch ist um 45° gegen die Vertikale gekippt. Der gesamte Magnet ist für das Experiment auf einer hydraulischen Bühne montiert, die eine Höhenverstellung um ca. 200 mm erlaubt. Der Magnet ist als Hochspannungsmagnet ausgelegt mit einer Gesamtzahl von 40 000 Windungen. Die maximale Arbeitsspannung beträgt 3750 V, das maximale Magnetfeld 1,2 T. Als Stromversorgung für diesen Magneten dient ein stromstabilisiertes Netzgerät Typ V 2100 B der Fa. Varian. Die Spezifikationen für dieses Speisegerät geben an, daß gegen eine Änderung der Versorgungsspannung oder des Lastwiderstandes um 10% der Ausgangsstrom auf $1 \cdot 10^{-5}$ geregelt wird. Die wesentlichere zeitliche Stabilität des Magnetfeldes wurde über einen Zeitraum von 12 Stunden direkt gemessen mit Hilfe einer Protonenspinresonanz-Probe, die im Zentrum des Feldes zwischen den Polkappen positioniert war. Die so ermittelte zeitliche Stabilität des Magnetfeldes schwankte zwischen 10^{-5} und 10^{-4} bei einem Feldwert von 0,75 T. Diese Größenordnung der Feldregelung war für das Experiment völlig unzureichend und machte eine zusätzliche Stabilisierung des Magnetfeldes erforderlich. Auf dieses System wird später ausführlich eingegangen.

Die räumliche Homogenität des Magneten um das geometrische Zentrum zwischen den Polschuhen wurde ebenfalls mit Hilfe einer Protonenspinresonanz ermittelt. Die Probe war dabei auf einem Schlitten montiert, der ein Ausmessen des Feldes in allen drei Koordinaten gestattete. Diese Messungen der Ausgangshomogenität wurden bei zeitlich geregeltem Magnetfeld vorgenommen, so daß zeitliche Schwankungen des Feldwertes die Messungen nicht verfälschen konnten. Wesentlich war die räumliche Homogenität über den Feldbereich, in dem sich später das Target befinden sollte. Die Ausgangshomogenität hing unter anderem ganz wesentlich davon ab, auf welche Weise der zeitliche Verlauf des Einschaltvorganges verlief. Als bestmöglicher Wert ergab sich eine mittlere Homogenität über das Targetvolumen von 15 cm^3 von 10 ppm RMS (Root mean square = mittlere quadratische Abweichung). Dieser Wert war ebenfalls weit von den experimentellen Erfordernissen entfernt und machte Feldkorrekturen des Magneten erforderlich (schimmen, engl.: to shim). Dieses Verfahren wird weiter unten genauer beschrieben.

4.2. Zeitliche Stabilität des Magnetsystems

Die im Experiment angestrebte Genauigkeit von $< 1 \text{ ppm}$ erforderte ein zeitlich auf besser als $0,1 \text{ ppm}$ stabiles Magnetfeld. Da das Speisegerät des Elektromagneten den Magnetstrom nur auf $\sim 10^{-5}$ konstant hält, war ein zusätzlicher Regelkreis erforderlich. Hierzu wurde ein Protonenspinresonanz-Regelsystem aufgebaut. Ein zweites, gleichartiges System diente zur Überwachung und Messung des Feldes.

Zum Verfahren der Protonenspinresonanz oder NMR liegt ausgedehnte Literatur vor, so daß hier nur die Grundzüge gestreift werden sollen:

Ein Kern mit dem magnetischen Moment μ besitzt im statischen Magnetfeld B_0 die Energieeigenzustände $E = \gamma \cdot h \cdot m \cdot B_0$.

Um Übergänge zwischen den einzelnen Niveaus zu induzieren, muß ein oszillierendes Magnetfeld senkrecht zum statischen Feld B_0 angelegt werden. Die erforderliche Frequenz ist durch das magnetische Moment des Kernes bestimmt; für Protonen beträgt $\Gamma = \mu / (h \cdot 1/2) = 425,711$ Hz/G, d.h. bei einem Magnetfeld von 1 T ($=10^4$ G) liegt die Frequenz im MHz-Bereich. Zur Messung der Resonanzfrequenz wird eine protonenhaltige Probe (hier H_2O) in das statische Magnetfeld gebracht. Senkrecht dazu wird durch eine Spule um der Probe ein schwaches Wechselfeld überlagert. Ist diese Frequenz gleich der Resonanzfrequenz, so gleichen sich die Besetzungsunterschiede zwischen den Energieniveaus durch Übergänge aus, d.h. die Probe nimmt Energie aus dem Wechselfeld auf. Die ursprüngliche Besetzung der Energieniveaus wird dann durch die Spin-Gitter-Wechselwirkung wiederhergestellt; diese ist durch die Relaxationszeit T_1 charakterisiert. Durch Verkürzung dieser Relaxationszeit kann die Zahl derjenigen Protonen erhöht werden, die an einem induzierten Übergang teilnehmen. Dadurch wird mehr Energie absorbiert, d.h. das Signal-Rausch-Verhältnis wird erhöht. Aufgrund dieses Mechanismus können die Kerne kontinuierlich Energie aus der Spule absorbieren. Diese Energieabsorption im Resonanzfall entspricht einer Änderung der Güte Q der Spule. Die Güteänderung wird nachgewiesen, indem ein Parallel-LC-Schwingkreis - mit der Protonenprobe innerhalb der Spule - auf die Resonanzfrequenz der Protonen im Magnetfeld abgestimmt wird; an diesen Kreis wird dann die Hochfrequenz angelegt. Durch die Abstimmung des Schwingkreises auf die Resonanzfrequenz wird erreicht, daß die Resonanz nur durch ein Absorptionssignal dargestellt wird. Die Resonanzfrequenz der Protonen wird nun periodisch variiert durch Überlagerung eines zusätzlichen schwachen Modulationsfeldes parallel zum statischen Magnetfeld B_2 . Die Änderung der Güte Q des LC-Kreises kann dann als Amplitudenmodulation der an diesem Kreis anliegenden

Hochfrequenz nachgewiesen werden. Sofern die Modulationsamplitude des Feldes klein ist gegen die Linienbreite des Absorptionssignals, wird bei einer Änderung der Hochfrequenz die Absorptionslinie differentiell abgetastet; man nimmt also auf diese Weise die Ableitung der Resonanzkurve auf. Die Frequenz des Modulationsfeldes ist niedrig; sie liegt zwischen 10 und 100 Hz, ihre Amplitude beträgt einige Zehntel G.

Das im vorliegenden Experiment eingesetzte Protonen-Spin-Resonanz-System ist in Anlehnung an ein NMR-System aufgebaut, das beim Müon-Speicher-Ring des (g-2)-Experiments am CERN eingesetzt wurde^{18,19}. Von dieser NMR-Anordnung wurden auch einige wesentliche Komponenten übernommen. Abb. 5 zeigt ein Blockdiagramm des NMR-Systems. Eine quarzstabile Frequenzdekade liefert die auf 10^{-8} stabile Hochfrequenz. Diese wird der vom oben erwähnten CERN-System entnommenen NMR-Verstärker-Einheit zugeführt. Die anliegende HF wird darin amplitudenstabilisiert und das modulierte Hochfrequenzsignal des LC-Kreises demoduliert und danach verstärkt. Die Einheit enthält ebenfalls die Kapazitäten des LC-Resonanzkreises, der automatisch über eine Varicap-Diode auf die Resonanzfrequenz abgestimmt wird (dieses Verfahren ist in¹⁸ ausführlich dargestellt). Das demodulierte NMR-Signal wird einem Lock-in-Verstärker zugeführt, dessen interner Oszillator auch das benötigte Referenzsignal liefert. Die Wechselspannung dieses Referenzoszillators wird auf Spulen im NMR-Probenkopf gegeben, die dort das Modulationsfeld parallel zum statischen Magnetfeld B_z erzeugen. Der Probenkopf gleicht im wesentlichen dem in¹⁸ beschriebenen. Er enthält die eben erwähnten Modulationsspulen und die Protonenprobe. Diese besteht aus Polyäthylen - Schrumpfschlauch (2,5 mm Durchmesser) mit der innen gewickelten Pick-up-Spule (16 Windungen auf 5 mm Länge). Die zylindrische Probe ist gefüllt mit Wasser unter Zusatz von paramagnetischen Ni^{++} -Ionen, die die Relaxationszeit T_1 verkürzen und so das Signal/Rausch-Verhältnis verbessern.

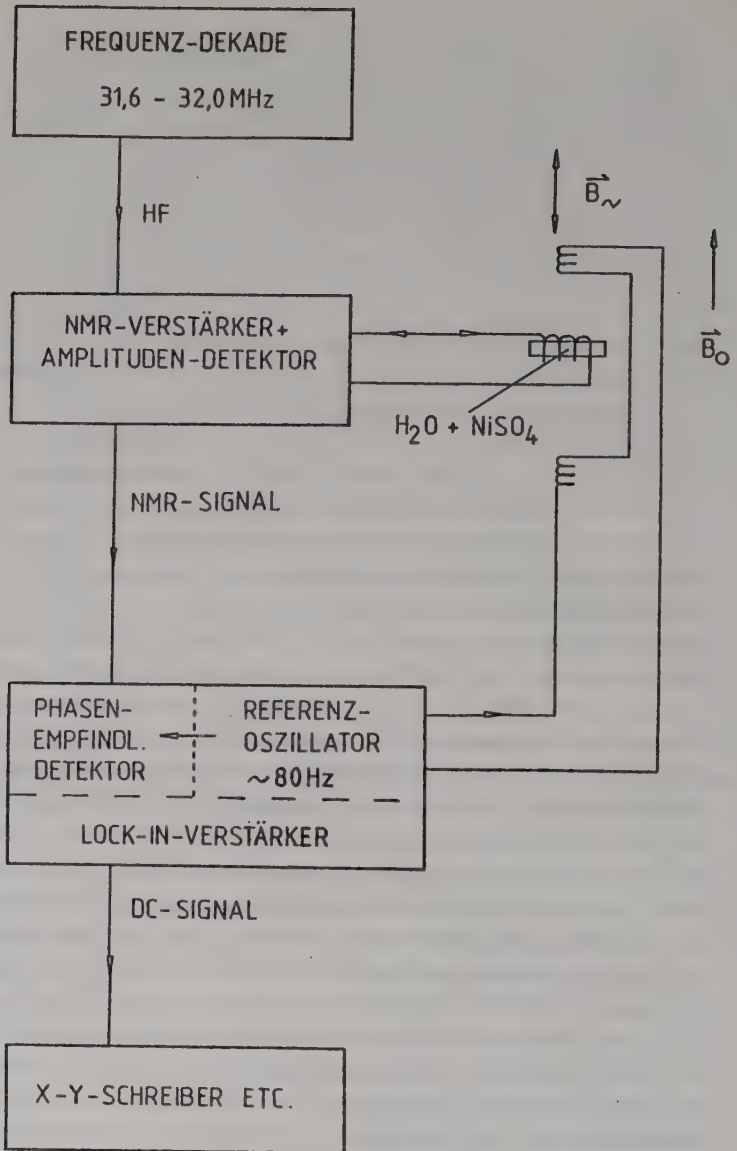


Abb. 5 : Schema des NMR - Systems

Das NMR-Signal ist bei differentieller Aufnahme eine Dispersionskurve als Funktion der Anregungsfrequenz. Wird stattdessen eine feste Frequenz $\omega_0 = \gamma B_0$ angelegt und das Magnetfeld um den Wert B_0 variiert, so liefert der Resonanzkreis in Abhängigkeit vom Magnetfeld ebenfalls ein Absorptionssignal, das dann über das Nachweissystem differenziert wird. Dieses Dispersionsignal ist empfindlich auf das Vorzeichen der Magnetfeldänderung und eignet sich somit zur Regelung des Feldes. Sofern die Änderung des Magnetfeldes kleiner ist als die halbe Linienbreite des des NMR-Signals, liefert der Lock-in-Nachweis in guter Näherung eine Spannung, die proportional ist zur Abweichung des Magnetfeldes vom Sollwert $B_0 = \omega_0 / \gamma$. Diese Spannung wird einem aktiven Integrator mit einstellbarer Zeitkonstante zugeführt; das integrierte Signal erzeugt dann über einen Stromverstärker den Regelstrom für zwei Korrekturspulen, die um die beiden Polschuhe gewickelt sind (s. Abb. 6). Das Dispersionsignal hat eine Linienbreite von etwa 300 Hz, entsprechend 10 ppm des Gesamtfeldes. Es zeigte sich, daß mit dem daraus gewonnenen Regelsignal das Magnetfeld auf ca. ± 1 Hz ($\approx 3 \cdot 10^{-8}$) stabilisiert werden konnte.

Mit der eben beschriebenen NMR-Regelung konnte das Magnetfeld an einem Punkt auf $3 \cdot 10^{-8}$ stabilisiert werden. Es zeigte sich jedoch, daß bei Meßzeiten über mehrere Stunden hinweg die Differenz des Magnetfeldes zwischen zwei Punkten nicht konstant war, d.h. daß die Feldkarte sich mit der Zeit änderte. Die Größenordnung dieser Felddriften zwischen zwei Meßpunkten im Abstand von 5 cm betrug etwa 1 ppm/h. Verursacht wurden diese Feldänderungen durch mechanische Verformungen des Magnetjochs und der Polschuhe, die durch Temperaturgradienten hervorgerufen wurden. Derartige Änderungen der Feldkarte konnten nicht toleriert werden, da in der späteren experimentellen Anordnung die zur Regelung benutzte Sonde in diesem Abstand vom Targetzentrum

montiert war. Daher wurde der Magnet in einer thermostatisierten Hütte betrieben und die Temperatur des Magnet-Kühlwassers über einen Wärmetauscher geregelt. Luft- und Kühlwassertemperatur wurden so auf $\pm 0,1^{\circ}\text{C}$ konstant gehalten. Dadurch gelang es, die langsamen Felddriften auf $\pm 0,05$ ppm zu reduzieren.

Nach dem ersten Einschalten des Magneten ändert sich die Feldkarte langsam um einige ppm und bleibt erst nach etwa 24 Stunden stabil. Dieser Effekt ist ebenfalls auf eine langsame Erwärmung des Magneten zurückzuführen.

4.3. Feld-Steuerung und -Überwachung

Zur Messung des stroboskopischen Signals ist eine schrittweise Änderung des Magnetfeldes erforderlich. Die Linienbreite dieser Resonanzkurve ist durch die μon -Lebensdauer gegeben und beträgt 145 kHz. Bei einer Resonanzfrequenz der μ^{+} von 100 MHz entspricht dies einer Breite von 0,15%. Um die Linienform des stroboskopischen Signals empfindlich testen zu können, wurde das Magnetfeld insgesamt um das Sechsfache der Linienbreite variiert. Dies bedeutet eine Änderung des Magnetfeldes um 0,88%. Andererseits mußte an jedem Meßpunkt das Magnetfeld mittels Protonenresonanz stabilisiert werden. Die Schrittweite war dabei groß gegen die Linienbreite des NMR-Signals.

Diese erforderliche Änderung des Magnetfeldes erfolgte über die Stromversorgung des Magneten. Das Speisegerät besitzt einen sog. Sweep-Eingang; bei Anlegen einer Spannung wird dem Magneten ein Zusatzstrom zugeführt der dieser Spannung proportional ist. Abb.6 zeigt das Blockdiagramm der gesamten Feldsteuerung. Der Prozessrechner des Experimentes, eine PDP 11/40, steuert über ein 16 bit CAMAC-Register die Frequenzdekade des NMR-Regelkreises an. Über den autonomen Regelkreis wird das Magnetfeld auf dieser Sollfrequenz dann sta-

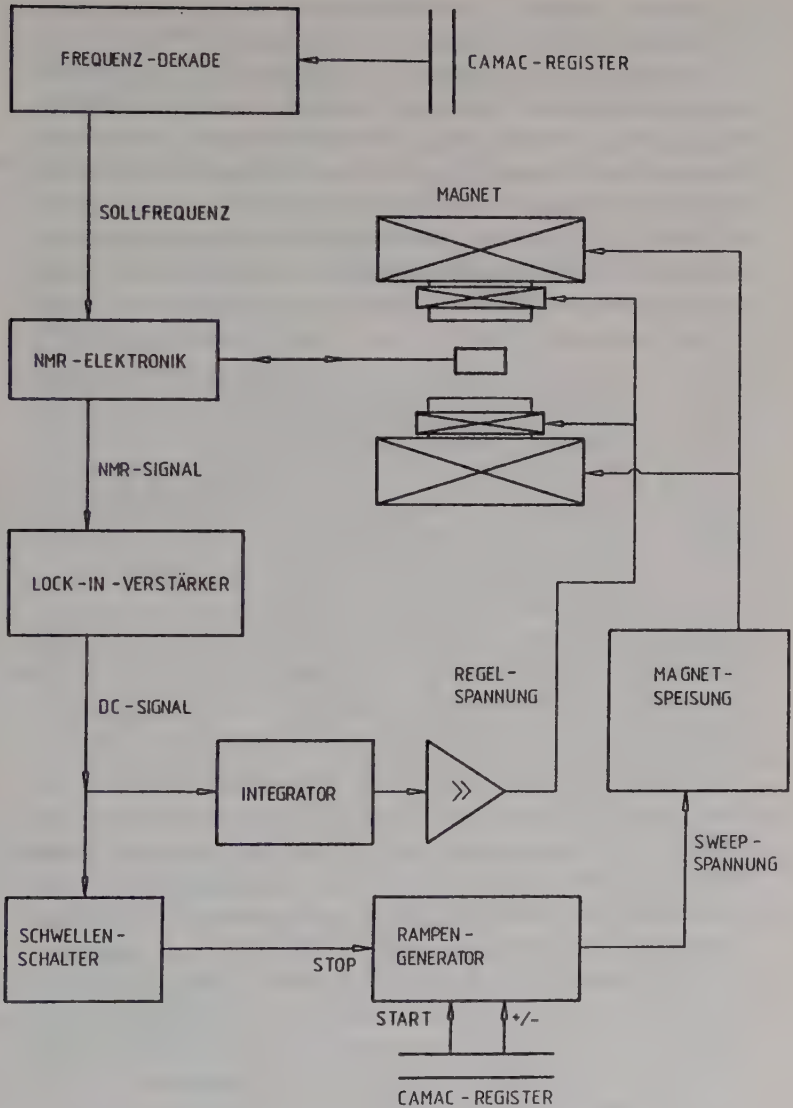


Abb. 6 : Blockdiagramm der Regelung und Steuerung des NMR - Magneten

bilisiert. Dabei ist vorausgesetzt, daß sich das Feld im Einfangbereich der Regelung (einige 10^{-4}) befindet. Ist dies nicht der Fall, muß der Magnetstrom manuell verändert werden. Soll das Magnetfeld geändert werden, so wird - via CAMAC-Register - die Frequenzdekade auf die neue Sollfrequenz des Feldes eingestellt. Da die Schrittweite wesentlich größer ist als der Regelbereich der NMR, verschwindet das NMR-Signal und der Regelkreis wird stromlos. Danach startet der Rechner - ebenfalls über ein CAMAC-Register - einen Rampengenerator. Dieser Generator liefert einen Gleichspannungspegel, der sich auf einen Startpuls hin rampenförmig langsam ändert. Das Vorzeichen der Änderung läßt sich über einen Flip-Flop wählen. Die Ausgangsspannung wird dem Sweep-Eingang der Stromversorgung des Magneten zugeführt und erzeugt darüber eine ihr proportionale Feldänderung. Nähert sich der Wert des Magnetfeldes dem Sollwert, so wird wieder ein NMR-Signal nachgewiesen. Wenn der Absolutbetrag des Ausgangssignals des Lock-in-Verstärkers einen bestimmten voreingestellten Wert überschreitet, wird über einen Schwellwert-Schalter der Rampengenerator und damit das Magnetfeld gestoppt. Gleichzeitig wird das NMR-Signal solange integriert, bis die Regelung das Feld auf dem Nulldurchgang der Dispersionskurve eingeregelt hat.

Die Stabilität des Magnetfeldes wurde während des Experimentes durch ein zweites NMR-System überwacht. Die Sonde dieses Systems war 2 cm neben der Regelsonde fest montiert. Da das Magnetfeld sich dort vom Feld am Ort der Regelsonde unterschied, mußte dieser Monitorkreis mit einer anderen NMR-Frequenz betrieben werden. Diese Frequenz wurde jeweils so gewählt, daß das NMR-Signal dieser Sonde einen positiven Wert ergab; d.h. es wurde an der positiven Flanke der Dispersionskurve gemessen. Am Ausgang des Lock-in-Verstärkers, der dieses Signal nachweist, liegt dann eine positive Spannung definierter Größe. Diese Spannung ist innerhalb der Linienbreite des

NMR-Signals in guter Näherung der Feldänderung proportional. Ihr Wert wird über ein CAMAC - Digital - Voltmeter für jeden einzelnen Meßpunkt im Rechner gespeichert. Falls das Magnetfeld sich während der Messung unbemerkt deutlich verändert haben sollte, kann so der Zeitpunkt der Feldänderung rekonstruiert werden. Zusätzlich wird diese NMR-Signalspannung mit einem festen vorwählbaren Schwellenwert laufend verglichen. Sobald das NMR-Signal diesen Wert unterschreitet (z.B. wenn die Regelung des Feldes ausfällt), wird die gesamte Messung gestoppt.

Zudem war es während des Experimentes möglich, wahlweise an jedem beliebigen Feldpunkt mit dieser Monitorsonde die gesamte NMR-Kurve aufzunehmen; die Resonanzfrequenz wurde dann vom Rechner angefittet und ausgedruckt. Um mögliche Änderungen der Feldkarte zu erkennen, wurde zusätzlich in regelmäßigen Abständen (etwa alle 2 Stunden) der Wert des Magnetfeldes im Zentrum des Targets kontrolliert. Zu diesem Zweck war ein dritter NMR-Probenkopf auf einem Schlitten hinter dem Target angebracht. Über eine Fernbedienung konnten das Target und ein Szintillationszähler (Zähler A_2 , vgl. Abb. 2) aus ihrer ursprünglichen Position vertikal herausbewegt werden, so daß diese Sonde - ebenfalls über Fernbedienung - ins Zentrum des Targets gefahren werden konnte. Die Endpositionen waren dabei jeweils durch Endabschalter genau definiert. Über einen CAMAC-Switch konnte die gesamte Elektronik des oben beschriebenen Monitorkreises an diese Sonde angeschlossen und das Magnetfeld am Ort des Targets bestimmt werden. Auf diese Weise war es möglich, auftretende Driften der Feldkarte zu bestimmen und zu korrigieren (s. Kap. 4.4.).

4.4. Magnetfeld-Homogenität

Die erforderliche räumliche Homogenität des Magnetfeldes folgt aus der im Experiment angestrebten Genauigkeit von besser als 1 ppm. Wir verlangten, daß das Magnetfeld keinen wesentlichen Beitrag zu diesem Gesamtfehler liefern sollte; das Feld, in dem die Müonen im Experiment gestoppt wurden, sollte also wesentlich besser als 1 ppm bekannt sein. Als Target diente ein kugelförmiges Volumen von 15 cm^3 . Die Verteilung der gestoppten μ^+ in diesem Volumen ist allerdings nicht bekannt und auch nur schwer einer Messung zugänglich. Um trotzdem eine verlässliche Aussage über das Feld am Ort der Müonen machen zu können, muß nicht nur das mittlere Feld im Bereich des Targets genau bekannt sein; es wird zusätzlich verlangt, daß die Schwankung des Magnetfeldes im gesamten Targetbereich wesentlich kleiner ist als der Gesamtfehler der Messung des magnetischen Momentes des μ^+ . Wie bereits oben erwähnt, erfüllte der Magnet diese Anforderungen nicht von vorneherein. Zur Vermessung des Magnetfeldes verwandten wir das in Kap. 4.2. beschriebene NMR - System.

Das empfindliche Volumen des Probenkopfes betrug nur ca. 5 mm^3 , so daß - gemessen an dem interessierenden Volumen von $15 \text{ cm}^3 = 15000 \text{ mm}^3$ - das Feld in guter Näherung punktweise ausgemessen werden konnte. Zum schrittweisen Vermessen des Magnetfeldes wurde die NMR-Probe an einem Aluminiumträger auf einem Schlitten befestigt, der eine variable Positionierung der Sonde in allen drei Koordinaten ermöglichte. Mit Hilfe einer Lehre konnte die Reproduzierbarkeit der Sondenposition kontrolliert werden. Aufgrund des relativ langen Trägerarms der Sonde war die Position nur auf $\pm 0,5 \text{ mm}$ genau einstellbar. Diese Genauigkeit war allerdings zur Bestimmung des Feldwertes ausreichend und beeinflusste die Meßgenauigkeit nicht. Der Schlitten selbst war vor den Spulen des Elektromagneten an einem Gestell fixiert. Bis auf die Antriebs-

elemente waren alle Teile des Schlittens aus Aluminium gefertigt; der gesamte Aufbau veränderte das Magnetfeld im Zentrum nicht meßbar.

Zur Bestimmung der Feldhomogenität des Magneten über das Targetvolumen wurde ein Raster längs der Koordinaten des Schlittens durch das Meßvolumen gelegt. Der Rasterabstand betrug dabei 5 mm; das gesamte Kugelvolumen mit einem Radius von 15 mm wurde so durch insgesamt 117 Meßpunkte abgedeckt. Die Abb.7 zeigt ein Histogramm der Magnetfeldwerte an diesen Feldpunkten in Abhängigkeit vom Magnetfeld ohne eine Korrektur des Magnetfeldes. Die mittlere quadratische Abweichung des Feldes vom Mittelwert beträgt ± 10 ppm. Nimmt man allerdings an, daß die Stopverteilung der Müonen über das Targetvolumen nicht homogen ist, so erhöht sich die Unsicherheit in der Feldbestimmung noch beträchtlich. Dasselbe gilt für die Berücksichtigung einer unterschiedlichen Nachweiswahrscheinlichkeit für Zerfallspositronen aus verschiedenen Teilen des Targets.

Für die notwendige Verbesserung der Homogenität des Magnetfeldes stehen grundsätzlich zwei verschiedene Methoden zur Auswahl:

- eine Feldänderung durch Aufbringen von zusätzlichem Eisen (z.B. Eisenfolien) an den Polschuhen oder
- eine Feldkorrektur mittels Zusatzspulen von bestimmter Form, die ebenfalls an den Polschuhen angebracht werden (sog. Stromshims).

Wir entschieden uns aus folgenden Gründen für die zweite Methode:

- Stromshims sind einfach zu handhaben und besonders zur Korrektur kleinerer Volumina geeignet.
- Der Magnet wurde nur zu den einzelnen Meßruns mittels Kran ins Experimentierareal transportiert. Die mechanische Belastung dabei veränderte jedesmal die Feldkarte. Zudem war der Magnet im Areal vor den Quadrupolmagneten der Strahlführung positioniert; deren große Eisenmasse ver-

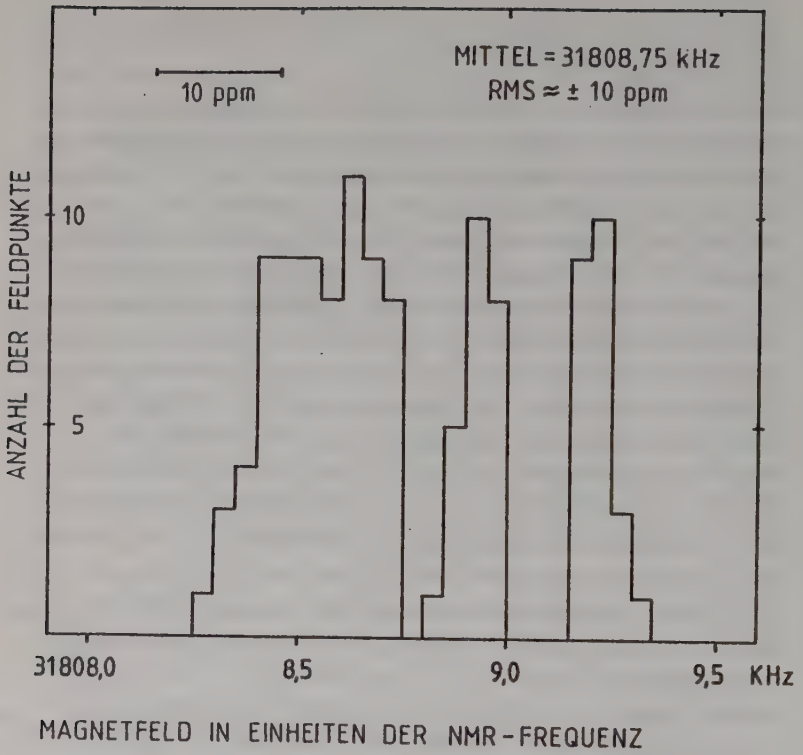


Abb.7: Histogramm der Verteilung des Magnetfeldes über das Targetvolumen. Das Magnetfeld wurde an 117 Punkten bestimmt und die Meßpunkte als Funktion des Feldes in Klassen mit 1,25 ppm Breite sortiert.

zerre die Feldkarte beträchtlich, so daß eine Feldkorrektur am Experimentierort notwendig war. Da ein Shim mittels zusätzlichem Eisen gegenüber Stromshims wesentlich zeitraubender ist, erschienen uns Stromshims geeigneter.

- Zusatzspulen auf den Polschuhen ermöglichen eine Feldkorrektur auch dann noch, wenn Zähler, Kollimatoren und Degradier zwischen den Polkappen montiert sind.

Die späteren positiven Erfahrungen mit Stromshims während des Experimentes bestätigten dann auch die Richtigkeit dieser Entscheidung.

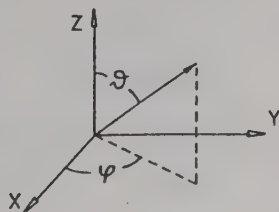
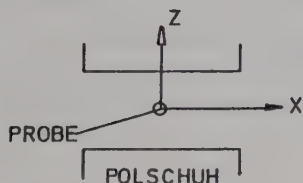
Die Korrektur von Feldfehlern durch Stromspulen auf der Oberfläche der Polschuhe eines Elektromagneten wurde zuerst von W. A. Anderson²⁰ beschrieben. Er gab Stromverteilungen an, die es ermöglichten, die verschiedenen Gradienten im Zentrum zwischen den Polschuhen unabhängig voneinander zu korrigieren. Die zugrundeliegende Methode ist in²⁰ und ²¹ ausführlich beschrieben und soll im folgenden nur kurz gestreift werden:

Das Magnetfeld $\vec{B}$ läßt sich als Gradient des Vektorpotentials V beschreiben, das die Laplace-Gleichung $\Delta V = 0$ erfüllt. Die Potentialfunktion V kann in sphärischen Koordinaten (Abb. 8) nach den Kugelfunktionen um den Ursprung entwickelt werden:

$$V(r, \vartheta, \varphi) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=0}^n r^n P_n^m(\cos \vartheta) [A_n^m \cos m\varphi + B_n^m \sin m\varphi]$$

P_n^m sind die Legendre-Polynome n-ten Grades und m-ter Ordnung

ABB. 8



Das Magnetfeld B ergibt sich dann aus V : $\vec{B} = -\text{grad } V$. Weiter soll angenommen werden, daß das Magnetfeld hauptsächlich aus der Komponente B_z längs der z-Achse besteht; dann folgt für den Absolutbetrag des Feldes:

$$|\vec{B}| = \left[(B_z + \delta B_z)^2 + \delta B_x^2 + \delta B_y^2 \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$\approx (B_z + \delta B_z) \cdot \left(1 + \frac{\delta B_x^2 + \delta B_y^2}{2B_z^2} + \dots \right)$$

Bei einer typischen Feld-Inhomogenität von 10^{-4} und Magnetfeldern der Größenordnung $B_z = 1 \text{ T}$ können also die Feldkomponenten in x- und y-Richtung vernachlässigt werden, d. h. :

$$\vec{B} = B_z = - \frac{\partial V}{\partial z} = -\cos\vartheta \cdot \frac{\partial V}{\partial r} + \frac{\sin\vartheta}{r} \frac{\partial V}{\partial \vartheta} ,$$

wobei das Vektorpotential V durch die obige orthogonale Entwicklung gegeben ist. Bei einer solchen Entwicklung nach Legendre-Polynomen entsteht in jeder Ordnung n ein Satz von unabhängigen Feldableitungen. Zur Feldkorrektur müssen dann nur noch Stromverteilungen gesucht werden, die jeweils genau einem dieser Terme entsprechen. Es ist dabei zweckmäßig, die Entwicklung des Magnetfeldes B_z in kartesischen Koordinaten auszudrücken. Für die ersten Terme der Reihenentwicklung erhält man dann (siehe²⁰):

$$B_z = A_1^0 + 2A_2^0 Z + 3A_2^1 X + 3B_2^1 Y + 3A_3^0 (2Z^2 - X^2 - Y^2)/2$$

$$+ 12A_3^1 ZX + 12B_3^1 ZY + 15A_3^2 (X^2 - Y^2) + 15B_3^2 (2XY)$$

$$+ A_4^0 Z [8Z^2 - 15(X^2 + Y^2)]/2 + 15A_4^1 X (4Z^2 - X^2 - Y^2)/2$$

$$+ 15B_4^1 Y (4Z^2 - X^2 - Y^2)/2 + 90A_4^2 Z (X^2 - Y^2)$$

$$+ 90B_4^2 Z (2XY) + 105A_4^3 X (X^2 - 3Y^2)$$

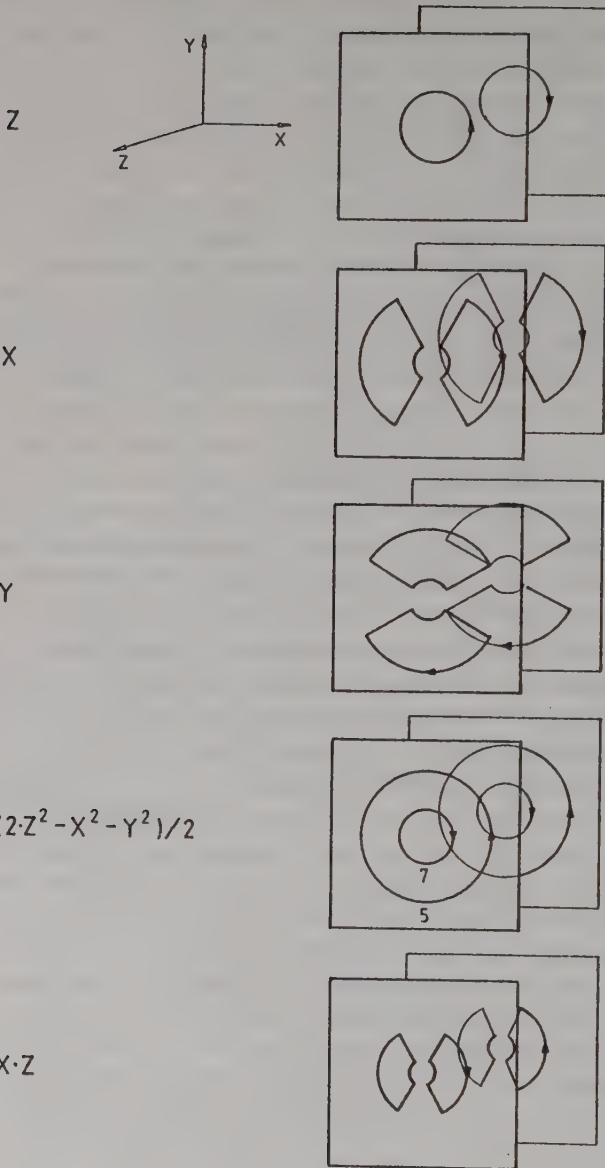
$$+ 105B_4^3 Y (3X^2 - Y^2) + \dots$$

Die zu den einzelnen Termen korrespondierenden Stromverteilungen sind ausführlich und in verschiedenen Auslegungen ebenfalls in²⁰ und ²¹ beschrieben. Für den 12"-Varian-Magneten wurde ein Shim-System von H.Wolf berechnet. Dieses System erlaubt die Korrektur von insgesamt 10 Gradienten, und zwar aller Gradienten bis zur zweiten Ordnung und jeweils eines Gradienten der dritten und vierten Ordnung. Tabelle 1 gibt die Entwicklungsterme für die einzelnen Gradienten an und schematisch die Anordnung der jeweiligen Stromverteilung zur Korrektur.

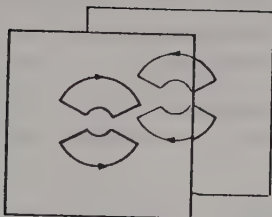
Das gesamte Shim-System ist auf zwei Platten montiert, die auf den Polschuhen des Magneten angebracht sind. Die Platten sind aus 2 mm starkem Plexiglas gefertigt; in diese sind 2mm breite und 1 mm tiefe Nuten eingefräst, die die Stromschleifen geschützt aufnehmen. Die Spulen selbst bestehen aus 10 - 15 Windungen und sind mit 0,1 mm starkem Kupferdraht gewickelt. Als Stromversorgung der Shimspulen dient für jeden Kreis eine Operationsverstärkerschaltung, die von einem NIM-Crate gespeist wird. Die Spannung ist auf 10^{-3} stabilisiert.

Zur Korrektur des Magnetfeldes wurde zuerst jeweils der Feldverlauf längs einer Koordinate mit einer NMR-Sonde im Bereich des Probenvolumens ausgemessen. Danach wurde - beginnend mit der niedrigsten Ordnung - der entsprechende Strom-Shim in willkürlicher Größe eingeschaltet und seine Wirkung auf das Magnetfeld in dieser Koordinate wieder kontrolliert. Aus der Änderung des Verlaufs konnten dann Vorzeichen und Größe des Korrekturstroms näherungsweise abgeschätzt werden. Es erwies sich aufgrund des Feldverlaufs als zweckmäßig, in dieser Weise zuerst alle Shimströme näherungsweise einzustellen und dann wieder von vorne beginnend in einem Iterationsverfahren die Feldhomogenität zu optimieren. Diese Korrektur mit Strom-Shims wurde zunächst erprobt mit den ersten vier Gradienten $x, y, z, 2z^2 - x^2 - y^2$; später wurde das System

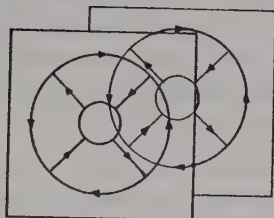
TABELLE 1 : STROMSHIMS ZUR FELDKORREKTUR



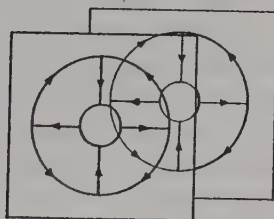
$$Y \cdot Z$$



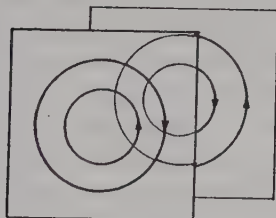
$$X^2 - Y^2$$



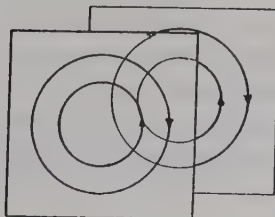
$$X \cdot Y$$



$$8Z^3 - 15(X^2 + Y^2) \cdot Z$$



$$38Z^4 - 24 \cdot Z^2 \cdot (X^2 + Y^2) \\ + Z \cdot (X^2 + Y^2)^2$$



auf acht Gradienten erweitert. Dabei zeigte sich, daß

- die wesentliche Verbesserung der Feldhomogenität durch die ersten vier Gradienten erreicht wird. Die Homogenität des Magnetfeldes über das Targetvolumen verbesserte sich dabei von ± 10 ppm auf $\pm 1,7$ ppm(RMS).
- der systematische Feldverlauf nach der Korrektur der ersten 8 Gradienten legte es nahe, noch zwei weitere Terme zur Korrektur hinzuzunehmen.

Mit diesem 10-Gradienten-System ließ sich die Feldinhomogenität über das Targetvolumen auf $\pm 0,4$ ppm reduzieren. Abb. 9 zeigt vergleichende Histogramme der Feldverteilung über das Targetvolumen ohne Shim und mit 4- bzw. 10-Gradienten-Shim.

Um ermitteln zu können, wie sich die verbliebene Inhomogenität von 0,4 ppm auf den Fehler bei der Bestimmung von μ_0/μ_p im Experiment auswirkt, muß zunächst die Stopverteilung der Müonen im Targetvolumen bekannt sein; weiter ist dann noch die unterschiedliche Akzeptanz des Zählerteleskops für Zerfallspositronen aus verschiedenen Targetpunkten zu berücksichtigen. Die Verteilung der gestöpten Müonen ist jedoch nur schwer einer Messung zugänglich. Für eine Abschätzung wurde daher das Targetvolumen von 15 cm^3 durch Schnitte längs der Hauptebenen in acht Segmente zerlegt und das mittlere Magnetfeld in jedem Segment getrennt bestimmt. Als extreme mögliche Verteilung der im Zähler registrierten Zerfallspositronen wurde dann angenommen, daß diese alle aus einer Halbkugel stammen, die aus je 4 Segmenten der Kugel besteht. Insgesamt sechs verschiedene Verteilungen sind so möglich. Das mittlere Magnetfeld stimmte in allen Halbkugeln innerhalb $\pm 0,08$ ppm überein, so daß dadurch im Rahmen der Meßgenauigkeit keine zusätzliche Unsicherheit in der Angabe des mittleren Magnetfeldes auftritt.

Weiter muß bei der Angabe der Feldhomogenität berücksichtigt werden, daß beim stroboskopischen Verfahren

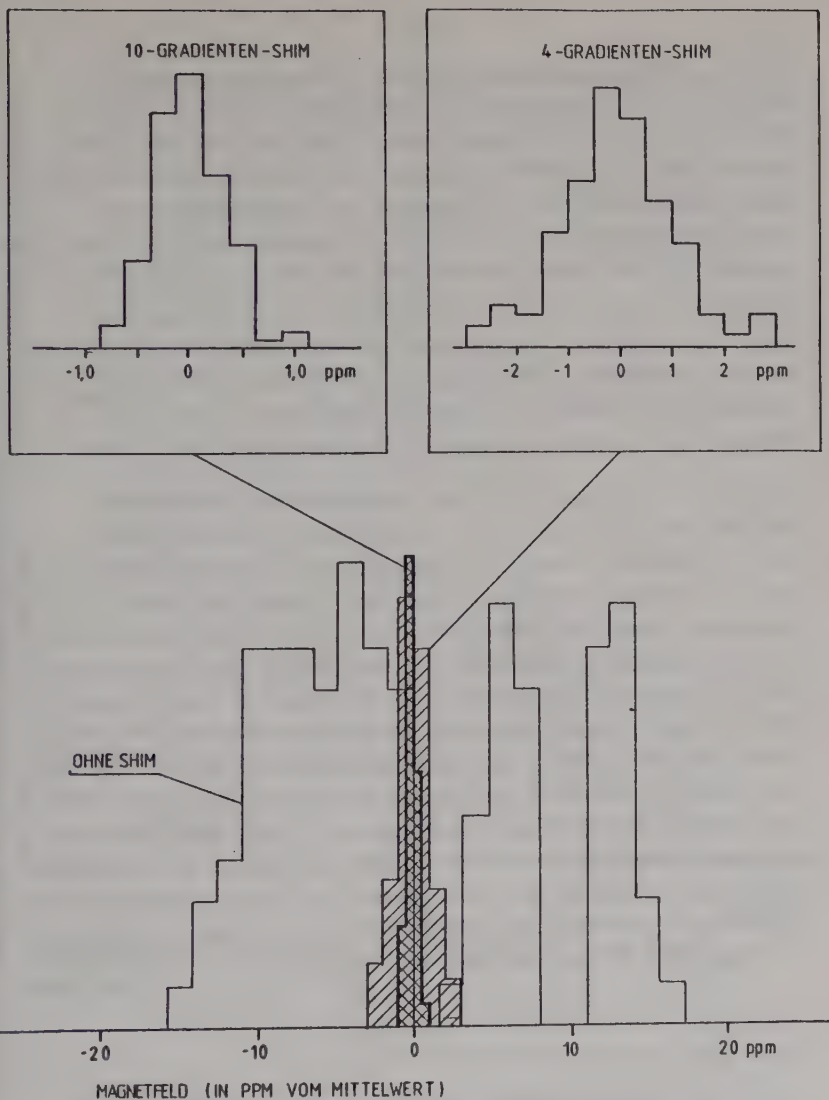


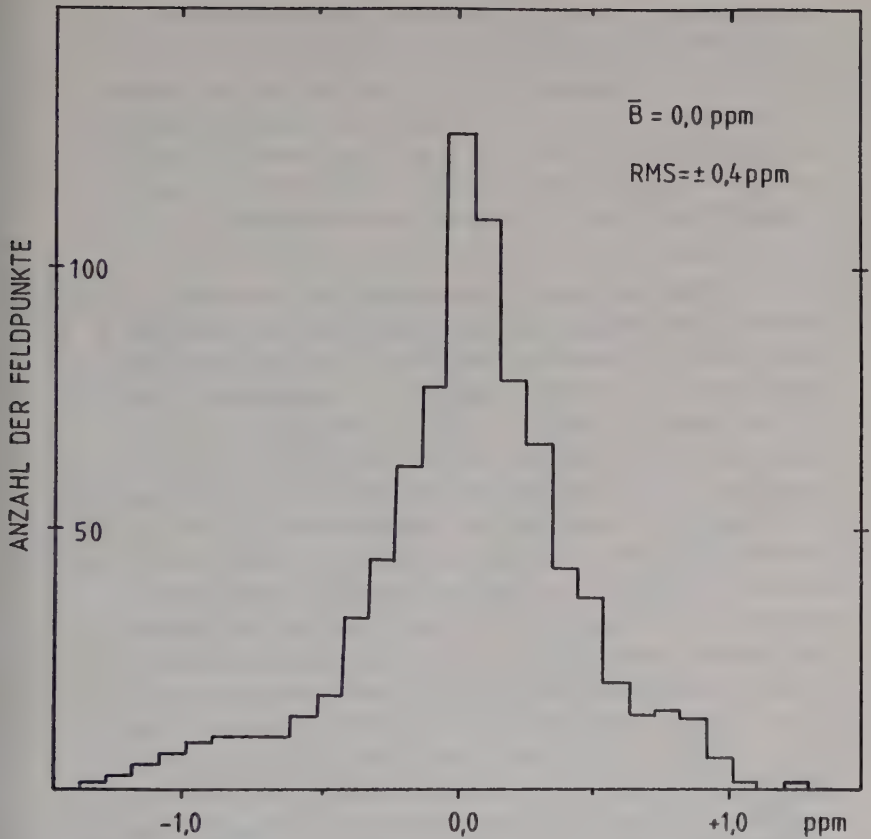
Abb.9: Feldhistogramme nach Korrektur des Magnetfeldes durch Strom - Shims zur Korrektur von 4 bzw. 10 Gradienten. Zum Vergleich ist die Feldverteilung ohne Shims mit angegeben. Jedes Histogramm enthält 117 Meßpunkte.

das Magnetfeld variiert wird (im Experiment wurde das Feld um etwa 1% geändert). Aufgrund von Sättigungseffekten im Eisen der Polkappen ändert sich mit dem Wert des Feldes auch die gesamte Feldkarte sowie deren Mittelwert. Diese Änderungen der Homogenität in Abhängigkeit vom Feld wurden ebenfalls verfolgt. Es zeigte sich, daß die Homogenität des Magnetfeldes sich bei einer Feldänderung von $5 \cdot 10^{-3}$ auf etwa $8 \cdot 10^{-7}$ verschlechterte. Diese Feldänderung entspricht allerdings bereits drei Linienbreiten des stroboskopischen Signals. Der Mittelwert der Feldkarten gegenüber der Magnetfeldstärke im Zentrum änderte sich dabei gleichzeitig um weniger als 0,1 ppm.

Die zeitliche Stabilität des Magnetfeldes im Bereich des Targets über lange Zeiten (> einige Tage) hinweg wurde ebenfalls überprüft. Während der Messungen wurde dazu in regelmäßigen Abständen (alle 24 h) ein vollständiges Feldhistogramm über das Targetvolumen erstellt. Es zeigte sich, daß während dieser Zeiten geringe Änderungen des Feldverlaufs auftraten, die auf geringe trotz Stabilisierung auftretende Temperaturdriften zurückzuführen waren. Diese Schwankungen in der Feldkarte bewirkten eine leichte Verschiebung ihres Mittelwertes. Die zeitliche Stabilität des Mittels der Feldkarte betrug $\leq 0,3$ ppm. Die Homogenität des Feldes änderte sich dagegen im Mittel nur unwesentlich. Abb. 10 zeigt zur Demonstration die Überlagerung von 9 Feldhistogrammen über das Targetvolumen, die in einem Zeitraum von 8 Tagen aufgenommen wurden.

4.5. Kalibration der NMR-Sonden

Zur Bestimmung des Magnetfeldes ist es notwendig, die Größe der Protonenspinresonanzfrequenz ω_p absolut zu bestimmen. Die NMR-Proben müssen also kalibriert werden, um Veränderungen des Feldes durch paramagnetische Ionen oder sonstige magnetische Verunreinigungen zu eliminieren. Dazu wurde ein Verfahren angewendet, das zur



ÄNDERUNG DES MAGNETFELDES GEGENÜBER DEM WERT IM ZENTRUM

Abb.10: Gemitteltes Histogramm des Magnetfeldes über das Targetvolumen. Die Abbildung zeigt die Überlagerung von 9 Feldkarten, die innerhalb von 8 Tagen aufgenommen wurden.

Feldbestimmung im (g-2)-Experiment am CERN entwickelt worden und in ¹⁸ ausführlich beschrieben ist.

Dabei wurde das Magnetfeld mit einer speziellen Kalibrationsanordnung gemessen, die aus einem Helmholtzspulenpaar mit auswechselbaren zylindrischen Proben im Zentrum der Spulen bestand. Die Helmholtzspulen blieben dabei im Magnetfeld fixiert, wenn die Probenröhrchen ausgetauscht wurden. Sämtliche Kabel und elektronischen Bauteile blieben bei einem Probenwechsel am gleichen Ort, so daß das Magnetfeld für alle Proben in der gleichen Weise durch die Umgebung verändert wurde. Die zylindrischen Proben selbst hatten ein Länge/Durchmesser-Verhältnis von $>15:1$, so daß sie in guter Näherung als unendlich lange Zylinder betrachtet werden können. Dies ist wesentlich für die Angabe der Suszeptibilitätskorrektur der Probe (s. u.). Der Einfluß des Probenmaterials auf das Magnetfeld wurde getestet, indem verschiedene Materialien eingesetzt wurden (Glas, PVC und Teflon), ebenso eine mögliche Änderung des Feldes durch die auf die Proben gewickelte Pick-up-Spule. Die Resonanzfrequenz wurde in dieser durch schrittweise Aufnahme des NMR-Signals bestimmt. Dabei wurde die Modulationsfrequenz klein gewählt ($\nu_{\text{mod}} = 10 - 20 \text{ Hz}$), entsprechend der Forderung $\nu_{\text{mod}} \cdot T_1 < 1$, wobei T_1 die longitudinale Relaxationszeit ist. Die Amplitude der Modulation ist klein gegen die Linienbreite (einige mG). Die Linienbreite betrug in diesem Fall dann nur noch wenige ppm (vgl. Abb. 11) und ermöglichte damit eine zuverlässige Bestimmung der Linienmitte auf $0,1 \text{ ppm}$ (bei homogenisiertem Magnetfeld). Auf diese Art wurden insgesamt acht verschiedene Proben gemessen, deren Resonanzfrequenzen auf $\pm 0,1 \text{ ppm}$ übereinstimmten. Mit diesen austauschbaren Proben konnte somit das Magnetfeld am Probenort mit eben dieser Genauigkeit bestimmt werden. Die Kalibrationsproben wurden jeweils abwechselnd ausgebaut und stattdessen die NMR-Sonde, mit der das Magnetfeld während des Experi-

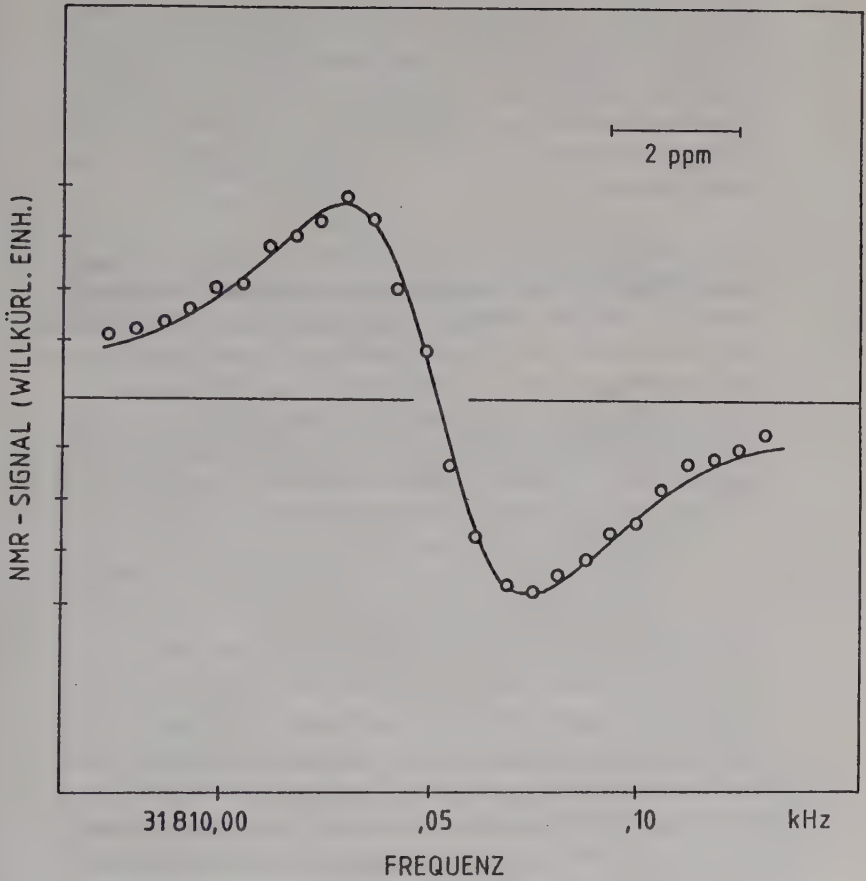


Abb.11: Beispiel einer NMR - Kurve bei differentieller Aufnahme des Resonanzsignals. Die durchgezogene Linie stellt die Ableitung einer Lorentzkurve mit 2 ppm Halbwertsbreite dar.

ments bestimmt wurde, ins Zentrum der Helmholtz-Anordnung gefahren. Mit dieser Sonde wurde dann ebenfalls das Feld am Ort der Kalibrationsproben gemessen. Die Messungen ergaben, daß diese Sonde einen um 0,8 ppm zu niedrigen Feldwert anzeigte; dies wurde als Korrektur später berücksichtigt. Versuche zeigten, daß das beschriebene Verfahren auf 0,1 ppm reproduzierbare Ergebnisse lieferte.

Zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses waren in der NMR-Probe dem Wasser noch paramagnetische Ni^{++} -Ionen (in Form von NiSO_4) zugefügt, die die Relaxationszeit verkürzen. Diese Ionen führen zu einer Änderung des Magnetfeldes am Ort der Protonen im Molekül. Diese Frequenzänderung der verwendeten Probe gegenüber einer reinen H_2O -Probe wurde mit einem hochauflösendem NMR-Spektrometer bestimmt. Diese Verschiebung betrug

$$\frac{\Delta \omega_{\text{NiSO}_4}}{\omega_{\text{H}_2\text{O}}} = (-0,35 \pm 0,1) \text{ ppm}$$

für die verwendete NiSO_4 -Lösung in H_2O .

Schließlich muß der Einfluß der diamagnetischen Suszeptibilität der Probe auf das Magnetfeld am Ort des Protons berücksichtigt werden. Da das H_2O -Molekül von einem magnetisierten Medium umgeben ist, ist das Magnetfeld am Kernort im allgemeinen vom externen Feld B_0 verschieden. Dieser Effekt ist von der Form der gesamten Probe abhängig. Für einen Zylinder, dessen Achse transversal zu B_0 liegt, ist das lokale Feld B_{lokal} gegeben durch :

$$B_{\text{lokal}} = B_0 \cdot (1 + (1/3 - N) \chi_m) \quad ,$$

wobei χ_m die molare Suszeptibilität ist ($\chi_m(\text{H}_2\text{O}) =$

$-9,050 \cdot 10^{-6}$) und N der von der Probenform abhängige Demagnetisierungsfaktor. Für eine Kugel gilt $N = 1/3$ (daraus folgt dann $B_{\text{lokal}} = B_0$), für einen langen Zylinder ist $N = 1/2$. Für eine zylindrische H_2O -Probe ergibt sich somit als Korrektur¹⁹:

$$\frac{\Delta \omega_{H_2O, \text{Zylindr.}}}{\omega_{H_2O}} = - 1,51 \text{ ppm}$$

d.h. das Feld am Ort des Protons in einer zylindrischen H_2O -Probe (transversal zum Feld) ist 1,51 ppm größer als das externe Magnetfeld.

4.6. Zusammenfassung aller Magnetfeld-Korrekturen

Die in den vorangegangenen Abschnitten diskutierten Korrekturen zur Bestimmung des Magnetfeldes und ihre Beiträge zum Gesamtfehler bei der Messung von μ_μ/μ_p sollen hier zusammenfassend dargestellt werden. Das Magnetfeld und die NMR-Proben erfordern im einzelnen folgende Korrekturen:

- das Feld des NMR-Magneten wurde zeitlich stabilisiert mit einer NMR-Regelung. Diese Anordnung stabilisierte das Magnetfeld an jedem Feldpunkt mit einer Genauigkeit von $0,3 \cdot 10^{-7}$.
- Die räumliche Homogenität des Magnetfeldes über das Targetvolumen wurde mit einem Strom-Shim-System auf 0,4 ppm verbessert. Bei Annahme verschiedener Stopverteilungen folgt daraus eine Unsicherheit von 0,15 ppm in der Angabe des mittleren Feldes am Ort der gestoppten Müonen.
- Langzeitmessungen ergaben leichte Schwankungen des Verlaufs des Magnetfeldes. Die zeitliche Stabilität des Mittelwertes der Feldkarte betrug danach $\leq 0,3$ ppm.

- Die zur Messung verwendeten NMR-Sonden wurden absolut kalibriert mit einer Genauigkeit von 0,2 ppm. Die in der Probesubstanz enthaltenen paramagnetischen Ni^{++} -Ionen führten zu einer Verschiebung der NMR-Resonanzfrequenz, die auf 0,1 ppm bestimmt wurde. Die zylindrische Probenform erfordert ebenfalls eine Korrektur, die auf $5 \cdot 10^{-8}$ bekannt ist.

Bei quadratischer Addition aller oben aufgeführten Beiträge ergibt sich somit eine Unsicherheit von 0,4 ppm in der Bestimmung des absoluten Wertes des Magnetfeldes am Ort der gestoppten Müonen.

5. Chemie des positiven Müons

Nach der Diskussion der angewandten Methode zur Messung von μ_μ/μ_p und des experimentellen Aufbaus soll im weiteren die Auswirkung chemischer Effekte auf die Spin-Präzessionsfrequenz gestoppter Müonen untersucht werden.

5.1. Das Verhalten von μ^+ in Materie

Das positive Müon durchläuft bis zu seinem Zerfall eine Reihe von Prozessen, die in Abb. 12 schematisch in einem Flußdiagramm zusammengefaßt sind. Der polarisierte Müonenstrahl mit der relativ hohen Energie von 50 MeV ($p_\mu = 125 \text{ MeV}/c$) wird zunächst in einem Degradier abgebremst und dann in der Targetsubstanz teilweise gestoppt. Den größten Teil an Energie verlieren die Müonen durch Elektron-Streuung; sie erreichen so innerhalb von 10^{-10} bis 10^{-9} sec Energien von $2/3 \text{ keV}$. In der darauf folgenden Zeit durchläuft das Müon vielfachen Elektroneneinfang und -Verlust, wobei sich seine Energie auf etwa 200 eV verringert. Am Ende dieses Prozesses, der nach etwa 10^{-12} sec abgeschlossen ist, liegt das Müon in gebundener Form (neutralisiert) als das Atom Müonium (μ^+e^-) vor. Durch Stöße mit den Target-Atomen erreicht das Atom (μ^+e^-) dann sehr schnell (innerhalb $5 \cdot 10^{-13}$ sec) Energien von etwa 20 eV. Wesentlich ist hier, daß das Müon nur sehr kurze Zeit in freiem Müonium gebunden vorliegt. Dadurch ist gewährleistet, daß sich der Polarisationsvektor der Müonen nur unwesentlich aufgrund der Hyperfeinstruktur-Wechselwirkung gedreht hat. Während des gesamten bisher beschriebenen Prozesses hat sich die Polarisation um weniger als 10^{-4} verändert. Diese Erhaltung der Spin-Polarisation der Müonen ist eine wesentliche Voraussetzung für die Messung der Larmor-Präzession. Sobald das μ^+ für eine Zeit in der Größenordnung $\Delta t \approx 1/\Delta v \approx 10^{-10}$ sec im System (μ^+e^-) gebunden vorliegt, erfolgt eine sehr schnelle Depolarisation aufgrund der großen Hyperfeinstrukturaufspaltung Δv von Müonium. Diese schnelle Depolari-

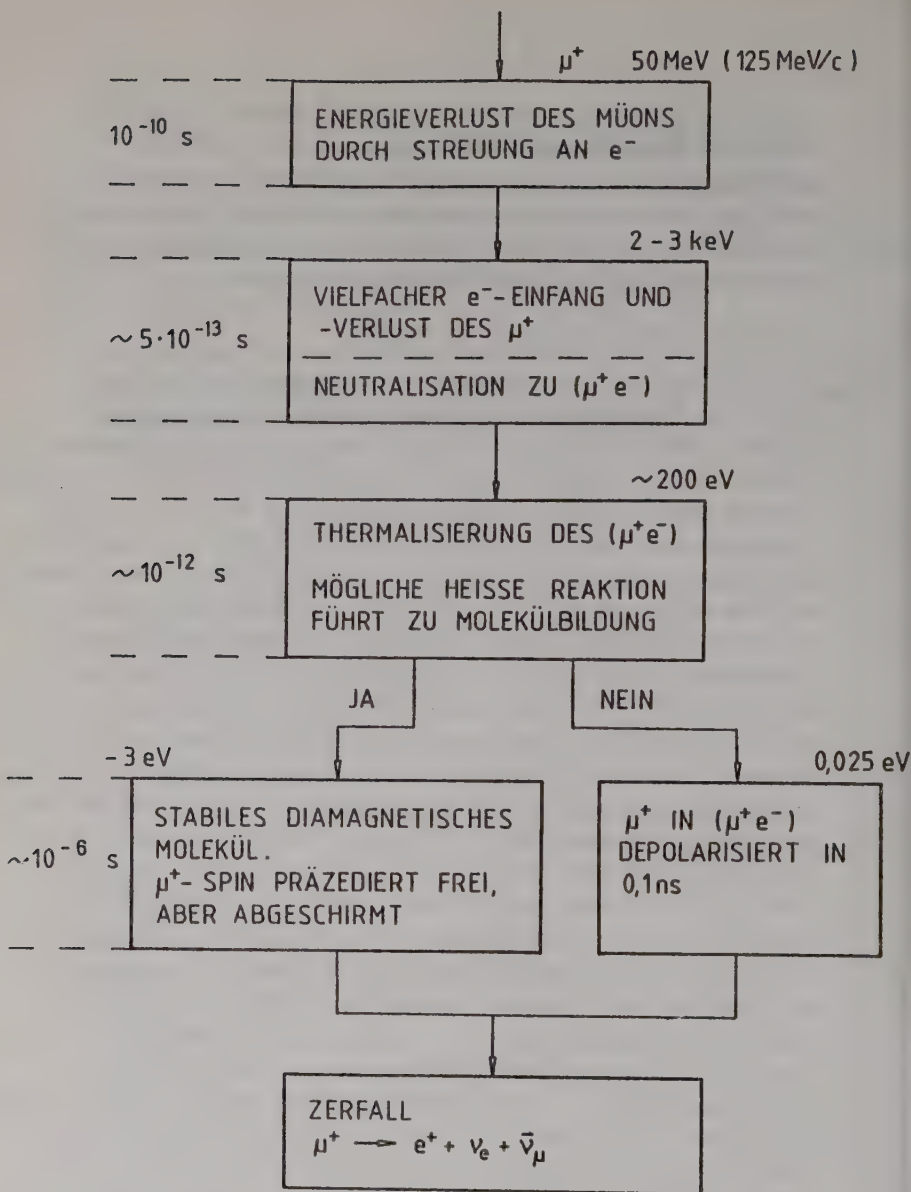


Abb. 12: Flußdiagramm des Verhaltens von positiven Müonen in Materie

sation tritt nicht mehr auf, wenn das Müon eine chemische Bindung mit einem anderen Atom eingeht, so daß ein diamagnetisches Molekül entsteht. Der μ^+ -Spin präzediert dann in dieser Verbindung quasi frei, wenn auch abgeschirmt durch seine Umgebung.

Das Müonium-Atom (μ^+e^-) kann chemisch im wesentlichen als ein leichtes Isotop ($m(\mu^+e^-) \approx 0,11 m(H)$) des Wasserstoff-Atoms betrachtet werden und reagiert daher auch chemisch in der gleichen Weise. Die Energien von ~ 20 eV ermöglichen es dabei, daß das Müonium-Atom bei Stößen mit den Target-Atomen bzw. -Molekülen an heißen chemischen Reaktionen mit diesen teilnimmt².

5.2. Die diamagnetische Abschirmung

Das von einem Proton oder Müon als Teil eines diamagnetischen Moleküls gesehene effektive Magnetfeld ist nicht genau gleich dem extern angelegten Feld, sondern um einen Bruchteil σ (etwa 20 - 30 ppm) reduziert durch die Abschirmung der Elektronenhülle. Jeweils abhängig von der vorliegenden Verbindung variiert dieser Betrag um einige ppm.

Zur Bestimmung von μ_μ/μ_p wird die Larmorfrequenz des Müons in einem bestimmten Molekül gemessen, verglichen mit der Protonenspinfrequenz in Wasser. Um daraus das magnetische Moment des Müons bestimmen zu können, müssen dann noch die Abschirmungen des externen Feldes am Ort des Müons und des Protons bekannt sein. Die Ursachen für diese verschiedenen Abschirmungen sind folgende:

- die unterschiedliche Elektronenhülle in verschiedenen Molekülen schirmt das Magnetfeld am Kernort jeweils anders ab.
- Bei einer Flüssigkeit führt der Einfluß von Nachbarmolekülen zu einer Verschiebung der Abschirmung gegenüber der Gasphase; dieser Effekt ist als Assoziationsverschiebung bekannt.

- Die Magnetisierung der gesamten Probe trägt ebenfalls zu Magnetfeld am Kernort bei. Dieser Beitrag der Suszeptibilität hängt von der Probenform ab.

Alle diese Effekte sind im Falle stabiler Kerne mit der Methode der Kernspinresonanz (NMR) einfach meßbar. Das positive Müon als instabiler Kern mit einer Lebensdauer von $2,2 \mu\text{s}$ ist jedoch für NMR-Messungen nicht geeignet. Man ist somit bei Müonium-Verbindungen angewiesen auf NMR-Messungen mit einer analogen Wasserstoffverbindung, bei der das Müon durch ein Proton ersetzt ist. Aus solchen Protonen-spinresonanz-Messungen sind dann Rückschlüsse möglich auf die Größe der diamagnetischen Abschirmung bei der entsprechenden Müonium-Verbindung. Allerdings wird die Abschirmung im allgemeinen bei beiden Verbindungen leicht unterschiedlich sein, da die Müon-Masse deutlich kleiner ist als die des Protons. Dieser Isotopieeffekt ist einer Messung nur schwer zugänglich. Die daraus resultierende Unsicherheit bei der Bestimmung des Magnetfeldes am Ort des Müons begrenzt die Genauigkeit des Experimentes. Aus diesem Grund muß bei der Auswahl einer geeigneten Targets substanz auf die Größe der diamagnetischen Abschirmung besonders eingegangen werden.

5.3. Auswahl der Targets substanz

Aus dem bisher geschilderten Verhalten des μ^+ in Materie lassen sich die wichtigsten Forderungen ableiten, die an eine geeignete Targets substanz zu stellen sind:

- Die Polarisation des Müon-Spins soll während der Lebensdauer erhalten bleiben. Da freies Müonium innerhalb 10^{-10} sec depolarisiert, muß das Atom (μ^+e^-) innerhalb dieser Zeitspanne mit der Targets substanz ein diamagnetisches Molekül bilden. Gesucht ist also eine Substanz, die mit Wasserstoff (und somit auch mit Müonium) sehr schnell, d.h. innerhalb 10^{-11} sec, reagiert. Dies schließt auch ein gasförmiges Target aus.

- Die Größe der Abschirmung des externen Magnetfeldes ist im allgemeinen für jede Verbindung verschieden. Um eine eindeutige Aussage über die Abschirmung in der vorliegenden Müonium-Verbindung machen zu können, darf das Atom (μ^+e^-) nur einen einzigen möglichen Reaktionskanal besitzen; Reaktionen der Targets substanz mit Müonium dürfen also im thermischen wie im epithermischen Bereich nur zu einem einzigen Ausgangsprodukt führen. Wegen der Möglichkeit heißer Reaktionen schließt dies Verbindungen als Targets substanz praktisch aus.
- Zur Bestimmung der chemischen Verschiebung der Müonium-Verbindung ist man auf NMR-Messungen an der analogen Wasserstoff-Verbindung angewiesen. Diese Verbindung muß existieren und herstellbar sein.
- Bei der Müonium-Verbindung sollen keine langsamen Depolarisationseffekte auftreten, wie sie in Festkörpern beobachtet werden; die Targets substanz sollte also in der flüssigen Phase vorliegen. Schließlich sollte sie eine hohe Dichte besitzen, um in einem kleinen Volumen eine hohe Stoprate der Müonen zu erzielen.

Alle Forderungen gleichzeitig werden praktisch nur durch die Halogene Fluor, Chlor, Brom und Jod erfüllt. Von diesen ist Brom als einziges Element unter Normalbedingungen (kein erhöhter Druck, keine niedrigen Temperaturen) leicht zu handhaben. Die Eignung des Halogens Brom (Br_2) soll im weiteren genauer erklärt werden:

- Müonium-Atome reagieren mit Brom sehr schnell; die Reaktionskonstante ist $k = (2,4 \pm 0,3) \cdot 10^{11} \text{ 1/(mol}\cdot\text{s)}^{17}$ entsprechend einer Reaktionszeit von $\sim 10^{-12} \text{ s}$. Als Folge ist in flüssigem Br_2 die Restpolarisation gestoppter Müonen annähernd 100 % (verglichen mit nur 50 % bei H_2O).
- In Br_2 gestoppte Müonen reagieren unter Bildung von $(\mu^+e^-)\text{-Br}$; andere Reaktionsprodukte treten nicht auf.

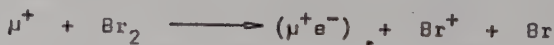
Verbindungen der Art HBr_n sind - im Gegensatz zu HF_n und HCl_n - bei Brom nicht beobachtet worden.

- Die zu der Müon-Verbindung analoge Wasserstoff-Verbindung existiert. Messungen der diamagnetischen Abschirmung von HBr liegen teils bereits vor ²² und sind im Rahmen dieser Arbeit ergänzt worden. Die Größe der Abschirmung sowie die Übertragbarkeit der Ergebnisse werden unten diskutiert.
- Brom liegt unter Normalbedingungen (bei 1 at, $\sim 20^\circ\text{C}$) als Flüssigkeit vor. Die Dichte beträgt 3,14 g/ccm, ist also deutlich höher als die von Wasser.

Flüssiges Brom erscheint also nach dem bisher Gesagten als eine brauchbare und relativ leicht zu handhabende Targetsubstanz.

5.4. Die diamagnetische Abschirmung des μ^+ in Brom

Ein in flüssigem Brom gestopptes Müon dissoziiert Brom-Moleküle beim Stoß und bildet so das Wasserstoff-Isotop Müonium:



Müonium (Mu) reagiert dann weiter mit Br_2 :



Zur Bestimmung der Abschirmung des externen Feldes am Ort des Müons geht man zunächst zweckmäßigerweise vom Fall des freien Moleküls aus. In einer ersten Näherung sind die Abschirmungen von freiem MuBr und HBr gleich; für HBr ist $\sigma = 34,7 \text{ ppm}$ ²³, d.h. das Proton in HBr sieht im Vergleich zum freien Proton ein um diesen Betrag kleineres Feld. Die einzelnen Effekte, die diesen Wert für das Müon in Br_2 ändern, sollen in den folgenden Abschnitten im einzelnen näher erklärt werden.

5.4.1. Der Isotopieeffekt

Es kann vorausgesetzt werden, daß sich die Struktur eines Moleküls nicht ändert, wenn in dieser Verbindung ein Proton durch ein Müon ersetzt wird. Allerdings besitzt das Müon, da seine Masse kleiner ist als die Protonenmasse, eine größere Nullpunktsenergie als das Proton in der gleichartigen Verbindung. Der Bindungsabstand ist dann für das Müon etwas größer und damit die diamagnetische Abschirmung kleiner als die entsprechende Abschirmung für das Proton. Über diese Änderung des Bindungsabstands bei Substitution des Protons in HBr liegen keine Messungen vor; es sind jedoch Rechnungen dazu durchgeführt worden. Für die Halogenverbindungen HF, HCl, HBr und HI ist dieser Isotopieeffekt der diamagnetischen Abschirmung schon früher berechnet worden ^{24,25}. In diesen Rechnungen wird die Abschirmung $\sigma(R)$ durch eine Taylorentwicklung um den Gleichgewichtsabstand des Moleküls R_e ausgedrückt:

$$\sigma(R) = \sigma(R_e) + (R - R_e) \cdot \sigma'(R_e) + \frac{1}{2} \cdot (R - R_e)^2 \cdot \sigma''(R_e)$$

Die gesamte beobachtete Abschirmung $\sigma_{\text{obs}} = \int \psi^2 \cdot \sigma(R) dR$ ist dann gegeben durch:

$$\sigma_{\text{obs}} = \sigma(R_e) + (R - R_e) \cdot \sigma'(R_e) + \frac{1}{2} \cdot (R - R_e)^2 \cdot \sigma''(R_e)$$

Die Größen $(R - R_e)$ und $(R - R_e)^2$ können dann für das anharmonische Morsepotential mittels Störungsrechnung bestimmt werden. Die Ableitungen σ' und σ'' werden durch numerische Differentiation des theoretischen Wertes von $\sigma(R)$ gewonnen. Der Isotopieeffekt der diamagnetischen Abschirmung folgt dann aus der unterschiedlichen reduzierten Masse von Müonium und Wasserstoff, die in die Berechnung von $(R - R_e)$ eingeht:

$$\Delta \sigma_{\mu-p} = [\overline{(R-R_e)_\mu} - \overline{(R-R_e)_p}] \cdot \sigma' + [\overline{(R-R_e)_\mu^2} - \overline{(R-R_e)_p^2}] \cdot \sigma''/2$$

In Tabelle 2 sind die Ergebnisse der Rechnungen von ^{24,25} zusammengefaßt.

TABELLE 2

BERECHNUNGEN VON ISOTOPIEEFFEKTEN ^{24,25}

	HF	HCl	HBr	HJ
$\sigma_\mu - \sigma_p$ (ppm)	-0,5	-0,6	-0,7	-0,9
σ_p (ppm)	27,8	30,8	34,7	43,6

Der Isotopieeffekt ist danach für die betrachteten zweiatomigen Moleküle in etwa proportional zur totalen Abschirmung des Moleküls. Über die Genauigkeit der Rechnungen sind keine Angaben gemacht. Allerdings ist eine - wahrscheinliche - Änderung der Elektronendichte nicht berücksichtigt. Es ist anzunehmen, daß die Elektronenhülle des Moleküls sich auf den neuen intramolekularen Abstand einstellt und sich so der Isotopieeffekt wieder verringert.

Neuere Berechnungen der Isotopieverschiebung bei HBr ²⁶ kommen zu annähernd dem gleichen Ergebnis. Die Autoren verfolgen im wesentlichen den oben beschriebenen Weg, nur wird die wesentliche Größe $(R - R_e)$, die mittlere Änderung des Gleichgewichtsabstandes, anders berechnet. Sie ergibt sich aus dem gesamten innermolekularen

Energieverlauf des Moleküls. Dieser Verlauf der Bindungsenergie wird aus den Verteilungen der Ladungsdichten beider Atome Br und H bzw. Mu sowie den besetzten Energieeigenzuständen bestimmt. Für die Isotopieverschiebung des freien Moleküls ergibt sich $\Delta\sigma = -0,640 \text{ ppm}$ mit einer systematischen Unsicherheit von $0,023 \text{ ppm}$ ²⁶. Dieser Wert deckt sich praktisch mit dem aus früheren Rechnungen^{24,25}, die $\Delta\sigma = -0,7 \text{ ppm}$ ergaben

5.4.2. Assoziationsverschiebung

Da im Target nicht freies (gasförmiges) MuBr vorliegt, sondern die MuBr -Moleküle in einer Flüssigkeit (Br_2) gelöst sind, muß auch der Einfluß der Nachbarmoleküle auf die diamagnetische Abschirmung am Ort des Müons berücksichtigt werden. Dieser Effekt wurde zuerst von Pople et al.²² untersucht und durch die Bildung von Wasserstoffbrücken erklärt, die eine Assoziation in der flüssigen Phase bewirken. Diese Attraktion eines Protons durch ein benachbartes Atom hat zwei Auswirkungen: Sie vergrößert den mittleren Bindungsabstand des Protons im Molekül und wirkt gleichzeitig als Störung auf die abschirmende Elektronenhülle. Beide Effekte bewirken eine Abnahme der Abschirmung des Protons.

Zur Bestimmung dieser Assoziationsverschiebung, die ein MuBr -Molekül in Br_2 erfährt, wurden NMR-Messungen an der analogen Verbindung HBr gemacht. Diese Messungen wurden an einem hochauflösenden NMR-Spektrometer (Typ Varian A 60) des Instituts für Chemie (Univ. Mainz) durchgeführt. Für diese Messungen wurde HBr -Gas durch flüssiges Brom geleitet. Bromwasserstoff-Gas löst sich dabei zu maximal 5 Mol-% in Br_2 ⁻²⁷. Bei der Bestimmung der Protonenresonanzfrequenz dieser Lösungen stellte sich heraus, daß die Frequenz des NMR-Signals stark abhing von der relativen Konzentration des HBr -Gases in Br_2 . Abb. 13 zeigt die gemessene Abhängigkeit der chemischen Verschiebung von der Konzentration des HBr -Gases in der

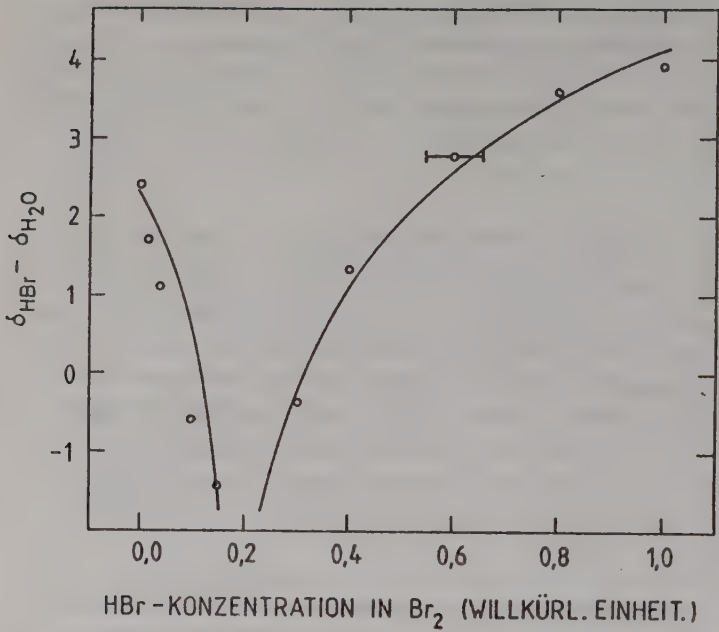


Abb. 13: Abhängigkeit der chemischen Verschiebung von der Konzentration des HBr-Gases in Br_2 . Die durchgezogene Kurve stellt die im Text erläuterte theoretische Abhängigkeit dar.

Lösung. Die HBr-Konzentration wurde dabei durch eine Verdünnungsreihe variiert, wobei allerdings die Genauigkeit nur etwa 10 % betrug. Diese Abhängigkeit des NMR-Signals von der relativen HBr-Menge läßt sich dadurch erklären, daß zusätzlich eine geringe Verunreinigung an H_2O in der Lösung vorhanden ist. HBr und H_2O können dann reagieren zu:



Die Lage des Gleichgewichts dieser Reaktion wird durch die Konstante k beschrieben

$$k = \frac{[\text{H}_3\text{O}^+] \cdot [\text{Br}^-]}{[\text{HBr}] \cdot [\text{H}_2\text{O}]} \quad , \quad [] = \text{KONZENTRATION}$$

Da $k \approx 10^8$ ist, liegt das Gleichgewicht auf der rechten Seite der Reaktionsgleichung. Die gesamte chemische Verschiebung setzt sich dann zusammen aus den Abschirmungen von H_2O , H_3O^+ und HBr, gewichtet mit der Anzahl H-Atome in der Verbindung sowie der jeweiligen Konzentration:

$$\sigma_{\text{ges.}} = \frac{2 \cdot \sigma(\text{H}_2\text{O}) \cdot [\text{H}_2\text{O}] + 3 \cdot \sigma(\text{H}_3\text{O}^+) \cdot [\text{H}_3\text{O}^+] + 1 \cdot \sigma(\text{HBr}) \cdot [\text{HBr}]}{2 \cdot [\text{H}_2\text{O}] + 3 \cdot [\text{H}_3\text{O}^+] + 1 \cdot [\text{HBr}]}$$

Aus dieser Gleichung läßt sich eine Abhängigkeit der Abschirmung von der HBr-Konzentration ableiten, wie sie gemessen wurde:

Unter Berücksichtigung der obigen Reaktion von H_2O und HBr hängt die Konzentration des Reaktionsproduktes H_3O^+ von deren Konzentrationen ab. Liegt H_2O gegenüber HBr im Überschuß vor, so ist die Konzentration an H_3O^+ nur durch die Ausgangskonzentration an HBr (ohne obige Reaktion mit H_2O) $[\text{HBr}]_0$ gegeben, d.h. $[\text{H}_3\text{O}^+] = [\text{HBr}]_0$. Die gesamte Abschirmung $\sigma_{\text{ges.}}$ ist dann

$$\sigma_{\text{ges.}} = \frac{3 \cdot x \cdot \sigma(\text{H}_3\text{O}^+) + 2 \cdot (1 - x) \cdot \sigma(\text{H}_2\text{O})}{2 + x}, \quad x = \frac{[\text{HBr}]_0}{[\text{H}_2\text{O}]_0}$$

wobei x den Quotienten der Konzentrationen an HBr und H_2O ohne die obige Reaktion darstellt. Ist dagegen HBr im Überschuß vorhanden, so ist die H_3O^+ -Konzentration durch die ursprüngliche Konzentration der Wasserverunreinigung gegeben: $[\text{H}_3\text{O}^+] = [\text{H}_2\text{O}]_0$. Für die diamagnetische Abschirmung gilt dann

$$\sigma_{\text{ges.}} = \frac{3 \cdot \sigma(\text{H}_3\text{O}^+) + (x - 1) \cdot \sigma(\text{HBr})}{2 + x}$$

Die obige Funktion wurde in einem Least-Square-Fit an die gemessenen Daten angepaßt, wobei für die Abschirmungen $\sigma(\text{H}_2\text{O})$ und $\sigma(\text{HBr})$ gemessene Werte eingesetzt wurden, die unten angegeben sind. Diese gefittete Abhängigkeit der chemischen Verschiebung von der relativen Konzentration an HBr ist in Abb. 13 mit angegeben. Unter Berücksichtigung der großen systematischen Unsicherheit in der Konzentrationsbestimmung lassen sich die Meßwerte durch die berechnete Abhängigkeit hinreichend gut erklären.

Bei Annahme einer Maximalkonzentration von 5 Mol-% HBr läßt sich aus dem gemessenen Kurvenverlauf eine H_2O -Verunreinigung von etwa 0,5 Mol-% abschätzen (entsprechend 0,1 Mol/l). Dieser Wert stimmt näherungsweise mit dem in der Literatur angegebenen Wert für die Löslichkeit von H_2O in Br_2 überein, die mit 0,05 Gew.-% angegeben ist, was ebenfalls etwa 0,1 Mol/l entspricht.

Eine Wasser-Verunreinigung des Brom-Targets von dieser Größenordnung hat wesentliche Konsequenzen für die chemische Umgebung, die ein in Br_2 gestopptes Müon vorfindet. MuBr -Moleküle können dann mit H_2O dissoziieren durch die Reaktion:



Das $(\text{MuH}_2\text{O})^+$ -Ion kann dann durch Proton-Austausch neutralisieren und so müonisches Wasser bilden:



In der Literatur werden für derartige Proton-Transfer-Reaktionen typische Reaktionsraten von $10^{10} (\text{Mol} \cdot \text{s})^{-1}$ angegeben²⁸. Dies führt zu Reaktionszeiten

$$\tau = (k \cdot C) \approx 10^{-9} \text{ s}, \quad C = \text{Konzentration } \text{H}_2\text{O}$$

Als Folge der großen Reaktionskonstante liegt das Gleichgewicht der obigen Reaktion auf der rechten Seite. Das Müon ist dann also den größten Teil seiner Lebensdauer in MuHO gebunden. Um dies zu vermeiden, wurden Brom-Targets präpariert, in denen die H_2O -Verunreinigung gebunden war. Hierzu wurde den Proben Phosphorpentoxid (P_2O_5) zugesetzt, um das Wasser aus dem Brom zu entfernen, und zusätzlich HBr-Gas in Brom gelöst. Eventuell noch vorhandene Spuren von Wasser wurden dann durch die Reaktion entfernt:



Die Wirksamkeit des Trocknungsmittels P_2O_5 konnte durch NMR-Messungen überprüft werden. Bei Zusatz einer genügenden Menge P_2O_5 verschwand die Abhängigkeit der chemischen Verschiebung des HBr in Br_2 von der Konzentration an HBr. Die so bestimmte Größe der diamagnetischen Abschirmung von in Brom gelöstem HBr beträgt 6,55 nmm, bezogen auf H_2O als Referenz. Die Abschirmung von in Br_2 gelöstem H_2O

ohne Zusatz von HBr wurde ebenfalls bestimmt. Sie beträgt 2,4 ppm, bezogen auf H_2O als Referenz. Diese Zahlen müssen noch korrigiert werden, da die Messungen in einer zylindrischen Probe erfolgten. Die Suszeptibilitätskorrektur für flüssiges Brom auf eine sphärische Probenform beträgt 2,16 ppm²⁹ und 1,53 ppm für Wasser (siehe Tabelle 3). Vergleicht man den korrigierten Wert der chemischen Verschiebung von HBr mit der Abschirmung von freiem, d.h. gasförmigem HBr²², so ergibt sich die Assoziationsverschiebung von in Brom gelöstem HBr zu 1,92 ppm. Verglichen mit der totalen diamagnetischen Abschirmung von ~ 35 ppm ist diese Assoziationsverschiebung sehr klein. Ein etwaiger Isotopie-Effekt dieser Verschiebung wird daher vernachlässigt. Diese Annahme wird gestützt durch Berechnungen der Abschirmung des Moleküls HBr bzw. MuBr in einer Br_2 -Umgebung²⁶. Eine Schale von Br_2 -Nachbarmolekülen ändert danach das Bindungspotential des MuBr-Moleküls und damit auch die mittlere Abweichung vom Gleichgewichtsabstand ($\bar{R} - R_e$). Die Assoziationsverschiebung wird dann beschrieben durch:

$$\Delta \sigma_{\text{gas-flüssig}} \sim [\bar{R}_{\text{fl.}} - R_{e,\text{fl.}} - (\bar{R}_{\text{gas}} - R_{e,\text{gas}})] \cdot \sigma'$$

Die numerische Berechnung dieser Größe aufgrund des modifizierten Potentials ergibt für das MuBr-Molekül

$$\Delta \sigma(\text{Gas} - \text{flüssig}) = - 1,95 \text{ ppm.}$$

Dieser Wert für die Assoziationsverschiebung von MuBr deckt sich mit dem experimentellen Wert der Verschiebung von HBr, der 1,92 ppm beträgt (s.o.), so daß es auch nach dieser Rechnung gerechtfertigt erscheint, den Isotopie-Effekt der Assoziationsverschiebung zu vernachlässigen.

5.5. H₂O als Target-Molekül

Im Experiment wurde die Spin-Präzessionsfrequenz gestoppter μ^+ in flüssigem Brom bestimmt. Nach den im letzten Abschnitt diskutierten Reaktionsmöglichkeiten hängt die diamagnetische Abschirmung von in Br₂ gestoppten Müonen ganz wesentlich davon ab, ob das Br₂-Target noch geringe H₂O-Verunreinigungen enthält. Die verwendeten Targets wurden daher zum Teil mit P₂O₅ getrocknet und dann den Proben HBr zugesetzt, um eine Bildung von MuHO zu verhindern. Andererseits ermöglicht aber auch ein H₂O-Zusatz zum Brom-Target eine Prüfung der Korrekturen zur chemischen Verschiebung. Aus diesem Grund wurden ebenfalls derartige Targets zur Messung der Larmor-Frequenz eingesetzt.

5.5.1. Verunreinigtes Brom als Targetsubstanz

Im Fall einer H₂O-Verunreinigung liegt ein gestopptes Müon praktisch immer in MuHO gebunden vor. Aufgrund des Isotopieeffektes der diamagnetischen Abschirmung (vgl. 5.4.1.) sind die Abschirmungen von MuHO und H₂O nicht genau gleich. Für freies HBr beträgt diese Größe 0,7 ppm. Bei dreiatomigen Molekülen, wie H₂O wird der Isotopieeffekt bei Substitution eines Protons durch ein Müon mit Sicherheit kleiner sein als bei den oben betrachteten zweiatomigen Verbindungen, da die gesamte Bindung weniger geändert wird. Darauf weisen auch die Größenordnungen der Isotopieeffekte in den magnetischen Abschirmungen von Deuterium hin. Messungen in reinen Flüssigkeiten ergaben zwischen H₂O und HDO Verschiebungen der Resonanz um $5 \cdot 10^{-8}$, wobei darin Suszeptibilitätsänderungen und intermolekulare Wechselwirkungen nicht berücksichtigt wurden³⁰. Da - zumindest bei zweiatomigen Molekülen - die Änderung der Abschirmung als proportional zur Änderung der reduzierten Masse des Moleküls angenommen

werden kann, ist ein Isotopieeffekt von einigen 10^{-7} für die Änderung der diamagnetischen Abschirmung zwischen freiem H_2O und MuO zu erwarten. Vorläufig schreiben wir daher dem Isotopieeffekt eine Korrektur von $(-0,5 \pm 0,5)$ ppm sowohl für $MuBr$ als auch für $MuHO$ zu. Zur Zeit werden ab initio Rechnungen analog zu den für flüssiges Brom diskutierten Rechnungen durchgeführt, die den angegebenen Fehler noch einmal erheblich reduzieren werden.

Die Assoziationsverschiebung von $MuHO$, das von Brom-Molekülen umgeben ist, läßt sich aus Messungen an HBr bestimmen. NMR-Messungen von in Br_2 gelöstem H_2O ergaben eine chemische Verschiebung von 2,4 ppm bezogen auf H_2O als Referenz. Von diesem Wert muß noch der Beitrag der Suszeptibilität der zylindrischen Br_2 -Probe subtrahiert werden (unter Berücksichtigung der H_2O -Referenz), um die Abschirmung bei sphärischer Probenform zu erhalten. Der korrigierte Wert von H_2O in Brom beträgt 3,03 ppm (s. Tabelle 3).

Es ist also zu erwarten, daß sich die Larmor-Frequenzen von gestoppten Müonen in Br_2 mit H_2O -Verunreinigung und in reinem Br_2 um 4,15 ppm unterscheiden. Eine Bestätigung dieser Vorhersage im Experiment ist eine wesentliche Stützung der bisherigen Überlegungen zur chemischen Verschiebung.

5.5.2. H_2O als Targets substanz

Zusätzlich zur Messung der Larmor-Präzession in flüssigem Brom wurden Messungen mit einem Wasser-Target durchgeführt, die einen Vergleich mit der Bestimmung von μ_μ/μ_p durch Crowe et al.³ ermöglichen sollten.

Über die genaue Größe der diamagnetischen Abschirmung eines $MuHO$ -Moleküls in H_2O können keine zuverlässigen Angaben gemacht werden, da über die Größe des Isotopieeffektes der Assoziationsverschiebung eine beträchtliche

Unsicherheit besteht. Bei der früheren Bestimmung der Larmor-Frequenz von μ^+ in H_2O ³ wurde als Isotopieeffekt der Assoziationsverschiebung eine Korrektur von 2 ± 2 ppm postuliert. Der Grund für diesen größeren Wert und seinen Fehler liegt darin, daß in Wasser eine sehr starke Bindung durch Wasserstoffbrücken existiert und daher die Assoziationsverschiebung groß ist ($\sigma_{\text{ass.}} = 4,58$ ppm ²²). Ein etwaiger Isotopieeffekt kann dann möglicherweise nicht mehr vernachlässigt werden. Außerdem besteht beim Stop eines Müons in H_2O die Möglichkeit, daß außer MuHO noch MuH entsteht ³. Wegen dieser Unsicherheiten wurden für die Bestimmung von μ_μ/μ_p Messungen mit H_2O als Targets substanz nicht in die Auswertung einbezogen. Sie bieten jedoch die Möglichkeit einer Kontrolle der oben angeführten chemischen Korrekturen.

5.6. Zusammenfassung aller chemischen Korrekturen

Die erforderlichen Korrekturen bei der Bestimmung von μ_μ/μ_p aufgrund der chemischen Umgebung des Müons sollen hier noch einmal zusammengefaßt werden.

Als Targets substanz wurden gereinigtes Brom, Brom mit H_2O -Zusatz und Wasser eingesetzt, wobei letzteres nicht zur Bestimmung von μ_μ/μ_p herangezogen wurde. Im Experiment wurde das Verhältnis der Larmor-Frequenzen ω_μ und ω_p' bestimmt, wobei ω_p' die NMR-Frequenz von Protonen in H_2O in sphärischer Probe bezeichnet (s. Kap. 4.5.). Das Müon und das Proton liegen also den unterschiedlichen chemischen Umgebungen vor. Diese Abschirmungen wurden für die verschiedenen möglichen Verbindungen in Br_2 und $\text{Br}_2 + \text{H}_2\text{O}$ durch NMR-Messungen am Proton bestimmt und verglichen mit der Protonenspin-Frequenz in H_2O . Die NMR-Frequenz in der jeweiligen Verbindung HX (d.h. HBr oder HOH) ist:

$$\omega_p(\text{HX}) = \frac{\omega(\text{HX})}{\omega(\text{H}_2\text{O})} \cdot \omega_p(\text{H}_2\text{O}) = [1 + \Delta] \cdot \omega_p(\text{H}_2\text{O})$$

wobei sich alle Frequenzen auf sphärische Proben beziehen. Die chemische Verschiebung Δ beträgt 7,18 ppm für HBr in Br₂ und 3,03 ppm für H₂O in Br₂.

Zur Bestimmung von μ_μ/μ_p muß jetzt noch der Isotopieeffekt δ der chemischen Verschiebung berücksichtigt werden:

$$\mu_\mu/\mu_p = \frac{\omega_\mu(\text{MuX})}{\omega_p(\text{HX})} \cdot (1 + \delta)$$

wobei MuX die jeweilige Verbindung bezeichnet, in der das Müon vorliegt, also entweder MuBr oder MuHO. Dieser Isotopieeffekt ist für MuBr berechnet worden und beträgt danach $\Delta\sigma = -0,7$ ppm. Für das dreiatomige Molekül MuHO wird der Effekt noch kleiner sein. Wir schätzen daher den Isotopieeffekt der chemischen Verschiebung für HBr wie für H₂O auf $-0,5$ ppm und schreiben dieser Korrektur eine Unsicherheit von 0,5 ppm zu.

Auf eine im Prinzip notwendige Korrektur wurde bisher noch nicht hingewiesen: Die gesamte Probe trägt durch ihre Magnetisierung auch zum Feld am Ort des Müons bei. Diese Korrektur (die bei der Messung der NMR-Proben angewandt wurde) verschwindet für eine sphärische Probenform (s. auch Kap. 4.5.). Aus diesem Grund wurde ein kugelförmiges Target gewählt, so daß dieser Beitrag der Suszeptibilität der Probe entfällt.

Sämtliche oben angeführten Beiträge zur diamagnetischen Abschirmung sind in Tabelle 3 zusammenfassend aufgelistet.

Ebenfalls bisher nicht erwähnt wurde der Einfluß einer Wechselwirkung des Spins beider Kerne in MuBr. Einen Aufschluß über die Größe dieser Wechselwirkung gibt die Messung des skalaren Anteils der Spin-Spin-Wechselwirkungskonstante, der gewöhnlich mit c_4 bezeichnet wird (der tensorielle Anteil c_3 mittelt sich bei der nicht richtungsempfindlichen NMR heraus). Messungen von c_4 liegen vor

für HCl und HJ, nicht jedoch für HBr. Bei HCl bzw. HJ beträgt c_4 $-0,07 \pm 0,10$ kHz bzw. $-0,08 \pm 0,07$ kHz (s. Landolt-Börnstein, Neue Serie, Bd.6); beide Werte sind also mit Null verträglich.

Dies zeigen auch experimentelle Messungen der Protonenspinresonanz. Es wurden NMR-Messungen in einem hochauflösenden Spektrometer gemacht, die für HBr keine meßbare Linienverbreiterung zeigten. Die typische Linienbreite betrug dabei ~ 10 Hz bei einer Resonanzfrequenz von 60 MHz mit einer Meßgenauigkeit von einigen 10^{-8} . Bei einer Extrapolation auf MuBr muß man das Verhältnis der magnetischen Momente und der Massen von Müon und Proton berücksichtigen. Dies vergrößert die Wechselwirkung um einen Faktor 3. Auf dem Niveau von 10^{-7} spielt demnach die Kern-Spin-Spin-Wechselwirkung keine Rolle.

TABELLE 3 :

BEITRÄGE ZUR DIAMAGNETISCHEN ABSCHIRMUNG DES MÜONS (IN PPM)

	(HBr) _{Br₂}	(H ₂ O) _{Br₂}	(MuBr) _{Br₂}	(MuHO) _{Br₂}
$\sigma_X - \sigma_{H_2O}$, IN DER FLÜSSIGEN PHASE , ZYLINDRISCHE PROBE	6,55	2,4		
$- 2 \cdot \pi \cdot \chi_v / 3$ (Br ₂)	2,16	2,16	2,16	2,16
$- 2 \cdot \pi \cdot \chi_v / 3$ (H ₂ O)	1,53	1,53	1,53	1,53
$(\sigma_X - \sigma_{H_2O})_{FLÜSSIG}$, SPHÄRISCHE PROBE	7,18	3,03		
ASSOZIATION	1,92	1,18	1,95 RECHNUNG	
ISOTOPIEVERSCHIEBUNG , FREIES MOLEKÜL			-0,7 RECHNUNG	-0,7
			-0,64 RECHNUNG	
				-0,5 ± 0,5

6. Ergebnisse

Die gemessenen Stroboskopischen Signale in den einzelnen Zeitfenstern werden beschrieben durch die in Kap. 2. dargestellte theoretische Verteilung (*) mit verschiedenen Phasenwinkeln φ_i (s.S. 14). Zum Fit an die gewonnenen Daten wurde das Programm MINUIT verwendet. Abb. 14 zeigt als Beispiel stroboskopische Signale aus fünf zeitlich aufeinanderfolgenden Zeitfenstern. Das Magnetfeld wurde dabei über sechs Linienbreiten des Signals in 29 Schritten variiert. Die dargestellten Daten wurden während einer Meßzeit von etwa 2 Tagen aufgenommen; dabei wurde das stroboskopische Signal insgesamt in 64 Zyklen überstrichen. Die durchgezogene Linie stellt den Fit durch die gemessenen Daten dar (der typische statistische Fehler an einem Meßpunkt ist dabei in einer Ausschnittvergrößerung sichtbar gemacht). Der Wert für das magnetische Moment μ_μ/μ_p wurde gewonnen in simultanen Fits von Gleichung (*) an die zehn Positronzeitfenster. Dabei waren die zehn Gate-Längen, die Phasen der zehn Gates, die effektive Asymmetrie und das magnetische Moment μ_μ/μ_p die im Fit freien Parameter; zu Testzwecken wurde zusätzlich die Lebensdauer τ_μ als freier Parameter eingeführt. Der Fit ergab relativ große Werte für das reduzierte χ^2 ; typisch waren Werte von $\chi^2 = 1,5$. Dies konnte auf Drifts und Schwankungen der Phase des Beam-Bursts des Müonenstrahls gegenüber der Beschleuniger-Referenz zurückgeführt werden. Um diesen Fehler in der Datenanalyse zu berücksichtigen, wurde der reine statistische Fehler um die Wurzel des normalisierten χ^2 vergrößert. Eine ausführliche Beschreibung dieser Datenanalyse ist in der Dissertation von H. Wolf zu finden.¹⁶ Zusätzlich zu berücksichtigen war der Einfluß eines stroboskopischen Untergrundes, der das Signal - wenn auch nur geringfügig - verschieben kann. Messungen dieses Untergrundsignals bei leerem Target ergaben eine Korrektur zum Wert des magnetischen Momentes von $0,2 \pm 0,25$ ppm.

STROBOSKOPISCHE SIGNALE

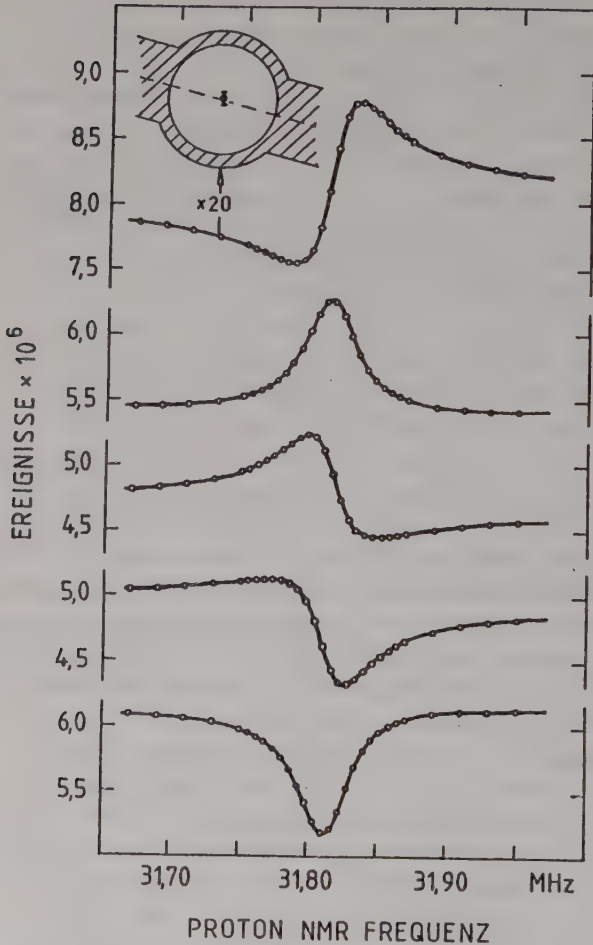


Abb. 14: Stroboskopische Signale in fünf aufeinanderfolgenden Zeitfenstern. Das Magnetfeld ist in Einheiten der Protonenspinresonanzfrequenz angegeben. Die durchgezogenen Linien stellen einen simultanen Fit aller zehn Positron-Gates dar. Der Einsatz oben links zeigt stark vergrößert einen Meßpunkt mit seinem statistischen Fehler.

Die Ergebnisse der vorläufigen Auswertung der Meßdaten sind in Tabelle 4 zusammengefaßt. Angegeben sind die Werte ω_{μ}/ω_p für 3 verschiedene Targets Substanzen (flüssiges Br_2 , flüssiges Br_2 mit H_2O -Verunreinigung und H_2O) mit den jeweiligen statistischen Fehlern. In diesen Werten sind bereits Korrekturen auf das Untergrundsignal und das absolute Magnetfeld enthalten (Spalte 2). Bei diesen drei Werten von ω_{μ}/ω_p muß zur Bestimmung von μ_{μ}/μ_p noch die unterschiedliche chemische Umgebung berücksichtigt werden, die das Magnetfeld am Ort des Müons und des Protons unterschiedlich in den einzelnen Verbindungen ändert (s. Kap. 5.6.). Diese Korrekturen, jeweils bezogen auf eine sphärische Probenform, sind in Spalte 3 angegeben; darin ist der Isotopieeffekt der chemischen Verschiebung noch nicht enthalten. Für die Targets Substanz H_2O fehlt die Korrekturangabe, da über diesen Isotopieeffekt der chemischen Verschiebung keine zuverlässigen Abschätzungen vorliegen. Diese Messung wurde nur zum Vergleich mit der früheren Bestimmung von μ_{μ}/μ_p ² herangezogen.

Die unkorrigierten Meßergebnisse von ω_{μ}/ω_p erlauben eine Kontrolle der Korrekturen zur diamagnetischen Abschirmung: Nach den in Kap. 5.4. und 5.5. vorhergesagten unterschiedlichen chemischen Verschiebungen von MuBr und MuHO müssen sich die Werte von $\omega_{\mu}(\text{MuX})/\omega_p$ für beide Verbindungen um 4,15 ppm unterscheiden. Für beide Verbindungen wurde ω_{μ}/ω_p auf 0,9 ppm (f. MuBr) bzw. 0,56 ppm (f. MuHO) bestimmt; in diesen Fehlern ist bereits die Unsicherheit in der Bestimmung des Magnetfeldes enthalten. Aus Tabelle 4 ist ersichtlich, daß die gemessenen Werte von ω_{μ}/ω_p eine Differenz von 3,8 ppm aufweisen und somit die Vorhersage von 4,15 ppm im Rahmen der Meßgenauigkeit voll bestätigt wird. Diese Übereinstimmung der beiden korrigierten Meßwerte liefert auch eine gewisse Bestätigung für die Annahme einer gemeinsamen Isotopieverschiebung von < 1 ppm.

Tabelle 4

Zusammenstellung der Resultate für ω_{μ}/ω_p und der korrigierten Werte. Die angegebenen Korrekturen der diamagnetischen Abschirmung beziehen sich auf sphärische Proben. Die angegebenen Fehler sind die korrigierten statistischen Fehler (s. Text).

(Verbindung) Target	ω_{μ}/ω_p	Chem. Verschiebung HX/H ₂ O	$(\mu_{\mu}/\mu_p)'$	$(\mu_{\mu}/\mu_p)'$ Mittel
(MuBr) _{Br} 2	3.1833244(29)	7.18(5) ppm	3.1833472(29)	3.1833464(16)
(MuHO) _{Br} 2	3.1833365(18)	3.03(5) ppm	3.1833461(18)	($\pm$ 0,5 ppm)
(MuHO) _H 2O	3.1833519(66)	0 ppm	3.1833519(66)	—

Die Bestimmung der Larmorfrequenz in einem H_2O -Target ergab gegenüber den obigen Messungen einen um mehr als 2 ppm höheren Wert; allerdings beträgt der Fehler dieser Messung 2,1 ppm. Die Übereinstimmung dieser Messung mit dem unkorrigierten von Crowe et al.³ gemessenen Wert von ω_μ/ω_p in H_2O ist gut (s. auch Abb.15). Wir können daher die beiden Meßergebnisse für eine weitere Diskussion zusammenfassen : $\omega_\mu/\omega_p(H_2O) = 3,1833524(46)$ (1,5 ppm). Ebenfalls in Abb.15 aufgeführt ist das von Crowe et al.³ erhaltene Ergebnis für die Messung von μ_μ/μ_p in $CH_2(CN)_2$; für diese Targets substanz wird dort keine Korrektur angenommen. Crowe et al. nehmen wegen der starken Wasserstoffbrückenbindung für den Isotopieeffekt der diamagnetischen Abschirmung von in H_2O gestoppten μ^+ eine Korrektur von -2 ± 2 ppm an. Wir halten diese Korrektur nach den vorliegenden Meßergebnissen und theoretischen Berechnungen für überschätzt. Wegen der in H_2O verbleibenden Unsicherheit ziehen wir das in H_2O erhaltene Ergebnis jedoch nur für den Vergleich der chemischen Verschiebungen, nicht jedoch zur Bestimmung von μ_μ/μ_p heran.

Die Differenzen der chemischen Abschirmungen, die für Müonen in den verschiedenen Targets gemessen wurden, sind in Tabelle 5 noch einmal zusammengestellt und mit den entsprechenden Werten aus NMR-Messungen verglichen (Angabe der Protonenspinresonanzmessungen in []) :

Tabelle 5:

$$\sigma(\text{MuBr})_{\text{Br}_2} - \sigma(\text{MuHO})_{\text{Br}_2} = 3,8 \text{ ppm} (1,0\text{ppm}) \quad [4,15 \text{ ppm}]$$

$$\sigma(\text{MuHO})_{\text{Br}_2} - \sigma(\text{MuHO})_{\text{H}_2\text{O}} = 4,8 \text{ ppm} (1,6\text{ppm}) \quad [3,65 \text{ ppm}]$$

$$\sigma(\text{MuBr})_{\text{Br}_2} - \sigma(\text{MuHO})_{\text{H}_2\text{O}} = 8,6 \text{ ppm} (1,6\text{ppm}) \quad [7,16 \text{ ppm}]$$

Der Vergleich mit den gemessenen diamagnetischen Abschirmungen von Protonen in den entsprechenden Umgebungen (s. Tabelle 3) zeigt folgendes: Die vorausgesagte diamagnetische Abschirmung für MuBr und MuHO ist, wie schon oben erwähnt, durch die Messungen von ω_{μ}/ω_p hervorragend bestätigt. Im Vergleich mit den Wasserdaten sind die entsprechenden Differenzen der diamagnetischen Abschirmungen zwar größer als vorhergesagt (4,8 ppm bzw. 8,6 ppm statt 3,0 bzw. 7,2 ppm wie vorhergesagt). Sie sind jedoch unter Berücksichtigung des größeren statistischen Fehlers immer noch konsistent.

Die einzelnen Ergebnisse unserer Messungen mit den angebrachten Korrekturen sind in Abb.15 dargestellt.

Der endgültige Wert des magnetischen Momentes wurde durch Kombination der beiden Resultate aus Brom-Targets unter Berücksichtigung der Isotopiekorrektur von 0,5 ppm gewonnen. Als Mittelwert daraus folgt für das magnetische Moment des Müons in Einheiten des magnetischen Moments des Protons:

$$\mu_{\mu}/\mu_p = 3,1833448 \text{ (29)} \quad (\pm 0,9 \text{ ppm})$$

Der angegebene Gesamtfehler setzt sich dabei aus folgenden Beiträgen zusammen:

- Die Bestimmung des absoluten Magnetfeldes ist mit einem Fehler von 0,4 ppm behaftet (s. Kap. 4.6.).
- Der stroboskopische Untergrund liefert einen Beitrag von 0,25 ppm in der Unsicherheit von ω_{μ}/ω_p .
- Der Fehler der chemischen Umgebung des Müons ist (abgesehen von der Meßgenauigkeit der NMR von 0,05 ppm, mit der die chemische Verschiebung bestimmt wurde) durch die Unsicherheit des Isotopieeffektes der diamagnetischen Abschirmung bestimmt. Ihr Fehler beträgt 0,5 ppm.

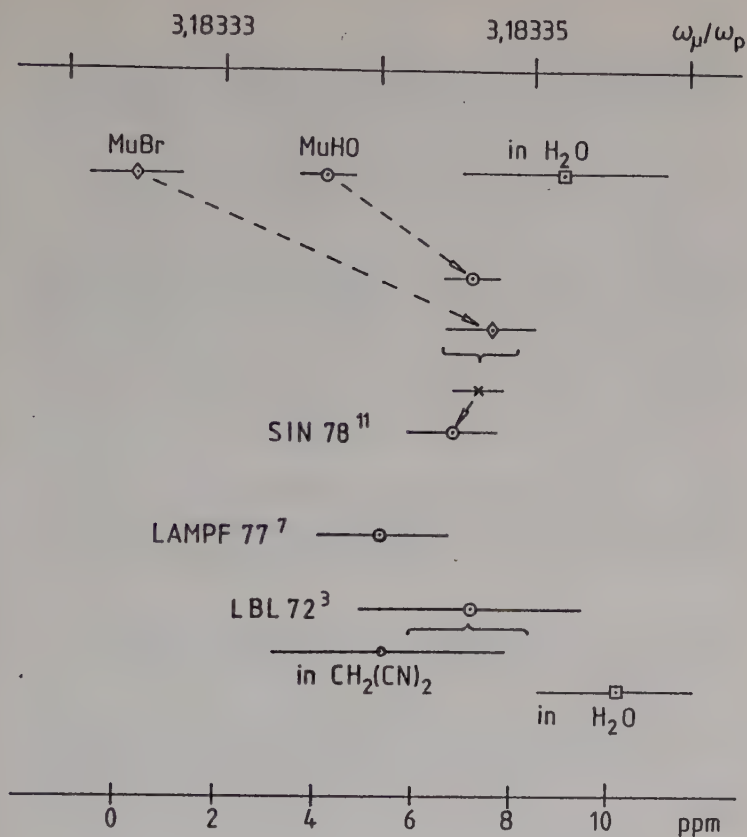


Abb. 15: Zusammenfassung der Messungen von ω_μ/ω_p und der zugehörigen Korrekturen. Zum Vergleich sind die Messungen von Crowe et al.³ und Casperson et al.⁷ mit angegeben.

- Der statistische Fehler, der sich aus der Messung beider Brom-Targets zusammensetzt, liefert einen Beitrag von 0,3 ppm zum Gesamtfehler.

Bei quadratischer Addition aller oben angeführten Beiträge folgt der angegebene Gesamtfehler von 0,9 ppm.

Der obige Wert ist in guter Übereinstimmung mit der bis dahin genauesten Messung des magnetischen Momentes von Casperson et al.³:

$$\mu_{\mu}/\mu_p = 3,1833403 \text{ (44)} \quad (\pm 1,4 \text{ ppm})$$

Das Gleiche gilt auch für die frühere Bestimmung von μ_{μ}/μ_p von Crowe et al.³ sowohl mit als auch ohne Berücksichtigung eines anomal großen Isotopieeffektes in H_2O :

$$\mu_{\mu}/\mu_p = 3,1833467 \text{ (82)} \quad (\pm 2,6 \text{ ppm})$$

Die Konsistenz der Daten erlaubt die Berechnung eines gewichteten Mittels aus den beiden genauesten Einzelmessungen:

$$\mu_{\mu}/\mu_p = 3,1833434 \text{ (24)} \quad (0,76 \text{ ppm})$$

Dieser Wert von μ_{μ}/μ_p läßt einen genaueren Vergleich der experimentellen Bestimmungen der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung von Müonium mit dem theoretisch vorhergesagten Wert zu. Die Hyperfeinstruktur von Müonium wurde von Casperson et al.⁷ durch Messung der Zeeman-Aufspaltung bestimmt:

$$\Delta\nu_{\text{exp}} = 4\,463\,302,35 \text{ (0,52) KHz} \quad (\pm 0,12 \text{ ppm})$$

Der bisherige theoretische Wert⁹ ist dagegen etwa eine Größenordnung ungenauer:

$$\Delta \nu_{th} = 4\,463\,297,9 \quad (7,0) \text{ KHz} \quad (\pm 1,6 \text{ ppm})$$

Der Hauptbeitrag von 5 kHz zu dem Fehler von $\Delta \nu_{th}$ ist die Unsicherheit der Bestimmung von μ_{μ}/μ_p (1,2 ppm); in der obigen Berechnung von $\Delta \nu_{th}$ wurde der gemittelte Wert von ⁷ und ³ für μ_{μ}/μ_p verwendet. Die neue Bestimmung des magnetischen Momentes liefert für den theoretischen Wert der HFS:

$$\Delta \nu_{th} = 4\,463\,300,3 \quad (5,0) \text{ KHz} \quad (\pm 1,1 \text{ ppm})$$

Die bisher schon gute Übereinstimmung von Theorie und Experiment wird also mit dem neuen Wert von μ_{μ}/μ_p noch verbessert. Die Berechnung der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung von Mönium muß also auf dem derzeitigen Niveau der Genauigkeit als vollständig angesehen werden.

Unter der Voraussetzung der Gültigkeit der QED kann man andererseits die obige genauere Brechnung der Hyperfeinstrukturaufspaltung dazu verwenden, zusammen mit unserer Messung von μ_{μ}/μ_p die Feinstrukturkonstante zu berechnen (siehe Kap. 1):

$$\Delta \nu_{th} = \alpha^2 \cdot \mu_{\mu}/\mu_p \cdot (2,63294557 \pm 0,3 \text{ ppm}) \cdot 10^{10} \text{ KHz}$$

Daraus ergibt sich mit dem obigen Bestwert von μ_{μ}/μ_p und $\Delta \nu_{exp}$ ⁷ der folgende Wert für α^{-1} :

$$\alpha^{-1} = 137,035955 \text{ (0,54 ppm)}$$

Dies ist nach dem Wert von α , der sich aus der Anomalie des magnetischen Momentes des Elektrons ergibt³¹, die beste Bestimmung der Feinstrukturkonstanten unter Voraussetzung der Gültigkeit der QED.

Der bisher genaueste Wert von α folgt aus dem Josephson-Effekt, durch den e/h bestimmt wird. In die daraus folgende Berechnung von α geht dann allerdings noch das gyromagnetische Verhältnis des Protons ein, das derzeit den Fehler von α im wesentlichen bestimmt. Mit dem mit verbesserter Genauigkeit bestimmten Wert von γ_p ergibt sich für α :

$$\alpha^{-1} = 137,035987 \text{ (0,21 ppm)}$$

In diese Bestimmung von α gehen keine Rechnungen der QED ein. Der Vergleich zeigt, daß unser gemittelter Wert von α^{-1} und der zuletzt angegebene miteinander konsistent sind.

Die Genauigkeit des Müon-Elektron-Massenverhältnisses wird ebenfalls limitiert durch die Unsicherheit in μ_μ/μ_p :

$$\frac{m_\mu}{m_e} = \frac{\mu_p}{\mu_\mu} \cdot \frac{\mu_e}{\mu_p} \cdot \frac{g_\mu}{g_e}$$

wobei die Unsicherheit von μ_μ/μ_p bei weitem überwiegt^{2,4}. Mit dem neuen Wert von μ_μ/μ_p folgt:

$$m_\mu/m_e = 206,76840 \text{ (16)} \quad (\pm 0,76 \text{ ppm})$$

mit den besten Werten von g_μ ⁴ und g_e ³¹.

Auf dem derzeit erreichten Niveau von besser als 1 ppm liefern also die Hyperfeinstruktur von Mäonium $\Delta\nu$ und die Larmor-Präzession von Müonen übereinstimmende Ergebnisse; gleiches gilt auch für die theoretische Berechnung von $\Delta\nu$. Der Vergleich über die Feinstrukturkonstante α zeigt weiter, daß diese Ergebnisse unter Verwendung der QED konsistent sind mit Resultaten, die aus anderen Bereichen der Physik gewonnen wurden (e/h aus dem Josephson-Effekt).

Herrn Prof. Dr. G. Gräff möchte ich danken für die stete Förderung und Unterstützung, die mir die Teilnahme an diesem Experiment ermöglichte.

Für die Überlassung des Themas und die Betreuung, sowie für seine aktive Hilfe und Unterstützung schulde ich Herrn Prof. Dr. E. Klempf besonderen Dank.

Mein Dank gilt ebenfalls allen Mitgliedern der μ SR-Arbeitsgruppe am SIN für ihre freundschaftliche und anregende Zusammenarbeit.

Für ihre Hilfe beim Aufbau und der Kalibration des NMR-Systems danke ich Herrn Dr. K. Borer und Herrn Dr. F. Lange.

Herrn Prof. Dr. H. Fischer möchte ich danken für klärende Diskussionen und wertvolle Vorschläge zu Problemen der Chemie.

Schließlich gilt mein Dank Herrn Dipl.Phys. H. Wolf für die gute Zusammenarbeit und seine Hilfen während des Experimentes.

Literaturverzeichnis

- 1 B.N.Taylor, W.H.Parker, D.N.Langenberg: The Fundamental Constants and Quantumelectrodynamics, Academic Press 1969
- 2 E.R.Cohen, B.N.Taylor, J. Phys. Chem. Ref. Data Vol. 2 (1973) 663
- 3 K.M.Crowe et al., Phys. Rev. D5 (1972) 2145
- 4 J. Bailey et al., Phys. Lett. 67D (1977) 225
- 5 D.E.Casperson et al., Phys. Lett. 59B (1975) 397
- 6 G.P.Lepage, Phys. Rev. A16 (1977) 863
- 7 D.E.Casperson et al., Phys. Rev. Lett. 38 (1977) 956
- 8 G.T.Bodwin et al., Phys. Rev. Lett. 41 (1978) 1088
- 9 W.E.Caswell et al., Phys. Rev. Lett. 41 (1978) 1092
- 10 T.W.Hänsch et al., Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 1336
- 11 M.Camani et al., Phys. Lett. 77B (1978) 326
- 12 M.B.Balandin et al., Sov. Phys. JETP 40 (1974) 811
- 13 D.P.Hutchinson et al., Phys. Rev. 131 (1963) 1351
- 14 A.Schenck in Nuclear and Particle Physics at Intermediate Energies, Ed. J.B.Warren, Plenum 1976
- 15 J.Christiansen et al., Phys. Rev. C1 (1970) 613

- 16 H.Wolf, Doktorarbeit Mainz 1979
- 17 H.J.Brewer et al. in Muon Physics III, Ed. V.W. Hughes und C.S.Wu, Academic Press 1975
- 18 K.Borer, Nucl. Instr. Meth. 143 (1977) 203
- 19 K.Borer, F.Lange, Nucl. Instr. Meth. 143 (1977) 219
- 20 W.A.Anderson, Rev. Sci. Instr. 32 (1961) 241
- 21 M.D.Sauzade et al. in Advances in Electronics and Electron Physics 34 (1973) 1
- 22 J.A.Pople et al., J. Chem. Phys. 28 (1958) 601
- 23 M.Fixman, J. Chem. Phys. 35 (1961) 679
- 24 D.Breskman et al., Phys. Lett. 338 (1970) 309
- 25 R.W.Williams, Phys. Lett. 34B (1971) 63
- 26 J.Keller, A.Schenck, Beitrag zur μ SR-Konferenz 1978, Rohrschach, Deutschland
- 27 Gmelin, Handbuch der Chemie Bd. 7
- 28 E.F.Calden, Chem. Rev. 69 (1969) 135
- 29 Landolt-Börnstein, Bd.: "Magnetische Eigenschaften der Materie"
- 30 P.Diehl et al., Helv. Chim. Acta 47 (1964) 545
- 31 R.S.Van Dyck et al., Phys. Rev. Lett. 37 (1977) 310

Lebenslauf

Name : Rainer-Ralf Schulze

geb. : am 21. Juni 1949
in Lengerich

Eltern : Dr. Heinz Schulze, Oberschulrat
Hermine Schulze
geb. Dunkhorst

Familienstand: verheiratet

Schulbildung : Volksschule 1956 - 1960 in Wiesbaden
Gymnasium 1960 - 1968 in Wiesbaden
Abitur im Juni 1968

Studium : WS 1968/69 - WS 1978/79 an der Johannes
Gutenberg-Universität in Mainz
Fachrichtung Physik
Vordiplom im WS 1970/71
Diplom im WS 1973/74
Diplomarbeit: "Demonstration quantenmecha-
nischer Effekte an einer
Molekülstrahlresonanz-Appa-
ratur"
Doktorarbeit: "Messung des magnetischen Mo-
mentes von in flüssigem Brom
gestoppten positiven Müonen
aus ihrer Larmorfrequenz"

Druck: Reinartz

Copier- und Offset-Center

Gaustraße 16, Telefon 06131/93870 + Kirchgarten 3, Telefon 06131/96202
6500 Mainz

